THESE

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD

CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

J.P. MARINIER

EFFETS DE COHERENCE ET DE LARGEUR DE RAIE DANS L'IONISATION MULTIPHOTONIQUE RESONNANTE DU CESIUM

Soutenue le 18 mai 1983, devant la Commission d'Examen

MM.	C. MANUS	Président
	B. CAGNAC	Rapporteur
	C. IMBERT	
Mme	M. LEBERRE	Examinateurs
MM.	S. LIBERMAN	
	G. MAINFRAY	

UNIV.
LIBRARY
IOWA

THESE

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD

CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

J.P. MARINIER

EFFETS DE COHERENCE ET DE LARGEUR DE RAIE DANS L'IONISATION MULTIPHOTONIQUE RESONNANTE DU CESIUM

Soutenue le 18 mai 1983, devant la Commission d'Examen

MM.	C. MANUS	Président
	B. CAGNAC	Rapporteur
	C. IMBERT	
Mme	M. LEBERRE	Examinateurs
MM.	S. LIBERMAN	
	G. MAINFRAY	

Ce mémoire décrit les résultats d'une étude expérimentale du rôle de la cohérence du rayonnement laser dans le phénomène d'ionisation multiphotonique résonnante. L'étude porte sur l'ionisation à 3 + 1 photons de l'atome de Césium, avec résonance à 3 photons sur le niveau 6F.

La comparaison des profils de résonance en lumières monomode et multimode montre notamment que le passage à une lumière incohérente provoque la multiplication du déplacement radiatif de la résonance et de l'aire du profil par les facteurs respectifs 2,8 $\mp$ 0,2 et 6 $\mp$ 30 %, à comparer avec les prévisions théoriques 3 et 3! = 6 obtenues en modélisant le champ laser multimode par un processus aléatoire gaussien monochromatique.

Les propriétés des profils multimodes s'interprètent en termes de compétition entre les effets de la statistique du champ et ceux de la largeur spectrale laser, agissant en sens opposés sur le signal d'ions. Celui-ci est maximal pour une lumière laser d'une trentaine de modes, qui réalise le meilleur compromis entre les deux types d'effets.

Mots-clés :

Ionisation multiphotonique résonnante.
Statistique du champ laser, cohérence optique.
Césium atomique.

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué dans les laboratoires du Service de Physique Atomique du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay. Je voudrais remercier ici Monsieur C. MANUS de l'accueil qu'il m'y a réservé, de l'attention avec laquelle il a suivi les développements de ce travail, ainsi que d'avoir bien voulu présider cette soutenance.

Je voudrais remercier Monsieur le Professeur CAGNAC de l'intérêt qu'il a porté à ce travail en acceptant la tâche de rapporteur scientifique. Je remercie également Monsieur S. LIBERMAN qui a assuré le patronage scientifique de cette thèse. Je tiens aussi à remercier Madame M. LEBERRE, Messieurs C. IMBERT et G. MAINFRAY d'avoir bien voulu faire partie du jury.

Je remercie aussi l'ensemble du personnel du Service de Physique Atomique pour l'aide qui m'a été apportée dans ce travail. Une place particulière est ici réservée à Messieurs L.-A. LOMPRE et G. MAINFRAY : les résultats expérimentaux présentés dans ce mémoire sont aussi les leurs. Je voudrais également mentionner l'aide apportée par Messieurs S. FENEUILLE, Y. GONTIER, Madame M. LEBERRE, Messieurs M. POIRIER, F. SANCHEZ, M. TRAHIN et P. ZOLLER dans de nombreuses discussions concernant les aspects théoriques des phénomènes. Ma reconnaissance va aussi à Monsieur J. THEBAULT, dont les connaissances en électronique furent précieuses, ainsi qu'à l'équipe de nos mécaniciens, Messieurs D. FONDANT, R. LAPRADE, R. BOUDIGUES et C. ROBINE pour leur assistance technique, ainsi que pour leur tolérance envers nos multiples empiètements sur leur domaine.

Enfin je voudrais remercier Mesdames C. CHAUCHON et Y. DESPREZ pour l'aide qu'elles m'ont apportée dans la réalisation matérielle de ce mémoire.

TABLE DES MATIERES

- INTRODUCTION

I - COHÉRENCE OPTIQUE ET MODÉLISATION DES CHAMPS LASERS

I.1 - Préliminaire
I.2 - La notion de champ électromagnétique aléatoire
I.3 - La notion de cohérence optique
I.4 - Propriétés statistiques des sources lasers
I.5 - Modélisation mathématique des champs lasers

a) Lasers monomodes
b) Lasers multimodes

I.6 - Liens avec les états du champ quantifié
I.7 - Conclusions

II - CHOIX D'UNE TRANSITION ATOMIQUE

II.1 - L'ionisation non-résonnante à 11 photons du Xénon
II.2 - L'ionisation multiphotonique résonnante du Césium
II.3 - Conclusions

III - THÉORIE DE L'IONISATION MULTIPHOTONIQUE RÉSONNANTE DANS UN CHAMP OPTIQUE FLUCTUANT

III.1 - Préliminaire
III.2 - Calcul de l'Hamiltonien effectif
III.3 - Résolution des équations dans le cas d'un champ laser monomode

III.4 - Laser multimode : modèle en bande nulle
III.5 - Laser multimode : modèle en bande large
III.6 - Cas du laser à diffusion de phase (CDP)
III.7 - Laser multimode : cas d'une largeur de raie quelconque
III.8 - Conclusions

IV - DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

IV.1 - Objectifs généraux
IV.2 - L'oscillateur à verre - Néodyme
a) Milieu amplificateur
b) Déclenchement de la cavité
c) Méthodes de sélection de modes
d) Structure de la cavité multimode
e) Structure de la cavité monomode
IV.3 - Amplification du faisceau laser
IV.4 - Enceinte d'interaction laser-Césium
IV.5 - Mesure des propriétés de la lumière laser

V - RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

V.1 - Comportement hors résonance
V.2 - Déplacement des maxima des profils de résonance
V.3 - Comparaison directe entre profils de résonance monomodes et multimodes
V.4 - Ordre de non-linéarité du signal d'ions à la résonance
V.5 - Largeurs de résonance en lumière multimode
V.6 - Aires des profils de résonance

VI - CALCULS COMPLÉMENTAIRES

VI.1 - Calcul de la distribution de probabilité de l'éclairement pour un nombre de modes fixé

VI.2 - Application au calcul des profils de résonance en bande nulle

VI.3 - Calcul du déplacement Stark effectif avec le modèle C.G.L.

VII - CONCLUSIONS

- APPENDICE A
- APPENDICE B
- APPENDICE C : Article Phys. Lett., 86 A, 17 (1981)
- APPENDICE D : Article J. Phys. B, 14, 4307 (1981)
- BIBLIOGRAPHIE.

INTRODUCTION

La possibilité de processus multiphotoniques a été prévue théoriquement dès les premières années de l'histoire de la Mécanique Quantique / 1 / (1931). D'une façon générale, est dite multiphotonique toute interaction champ électromagnétique-matière accompagnée par l'émission et/ou l'absorption simultanée de N photons. Le terme "simultané" signifie ici que les étapes intermédiaires par lesquelles passe le système au cours de l'interaction violent la loi de conservation de l'énergie et ne peuvent donc, à cause des relations d'incertitude d'Heisenberg, durer que des temps extrêmement brefs, en général de l'ordre de la période du champ électromagnétique.

La probabilité d'un processus multiphotonique est en général proportionnelle à la $N^{ième}$ puissance de l'intensité du champ électromagnétique incident, ainsi qu'à la $N^{ième}$ puissance de la constante de structure fine $\alpha = e^2/\hbar c \cong 1/137$. De telles probabilités sont très faibles pour les valeurs d'éclairement qu'on savait réaliser en laboratoire dans les années 1930, en particulier dans le domaine optique (par exemple, l'éclairement donné par une lampe à mercure est de l'ordre de 1 W/cm^2).

La première observation expérimentale fut obtenue 25 ans plus tard / 2 / dans le domaine des radiofréquences, où des générateurs assez puissants étaient disponibles. On observait des transitions dipolaires magnétiques entre sous-niveaux Zeeman, avec absorption simultanée de 2 ou 3 photons. Si on laisse de côté les processus à 2 photons de diffusion de la lumière (effets Raman et Rayleigh), les transitions multiphotoniques dans le domaine optique attendirent l'apparition des lasers en 1960 / 3-4 /. Kaiser observa, en 1961, une fluorescence bleue d'un cristal CaF_2Eu^{++} éclairé par un laser à rubis, mettant ainsi en évidence une absorption simultanée de 2 photons rouges / 5 /. Le rendement de conversion mesuré était de 10^{-7}. Des expériences analogues

suivirent, où la détection était le plus souvent réalisée par fluorescence / 6-8 /. Une ionisation à plusieurs photons, prévue théoriquement par Geltman et Keldysh / 9, 10 / fut observée pour la première fois par Delone en 1965 / 11 /.

Dès lors, une activité de recherche importante fut consacrée à l'ionisation multiphotonique / 12-17 / Citons par exemple les expériences de Voronov et Delone / 11, 18, 19 / et celles d'Agostini / 20 / sur l'ionisation multiphotonique des atomes de gaz rares, menées à des éclairements de 10^{11} à 10^{13} W/cm^2 à l'aide de lasers à Néodyme dont on utilise soit la radiation fondamentale (λ = 1,06 μ , $11 \leqslant N \leqslant 22$), soit l'harmonique 2 ($\lambda$ = 0,53 μ , $6 \leqslant N \leqslant 11$), les expériences de Held / 21 / sur l'ionisation des atomes alcalins ($I \sim 10^9$ W/cm^2, $2 \leqslant N \leqslant 5$) ainsi que les travaux théoriques de Bebb et Gold / 22 /, Zernik / 23 /, Gontier et Trahin / 24 / et Agarwal / 25 /. On étudia également le cas de l'ionisation multiphotonique résonnante (IMPR) / 13, 26, 27 /. En général, un processus multiphotonique est dit résonnant lorsque l'une des étapes intermédiaires est autorisée par la loi de conservation de l'énergie. Ainsi, en utilisant un laser accordable en longueur d'onde, on montra que la probabilité d'ionisation multiphotonique d'un atome s'accroît de plusieurs ordres de grandeur lorsque l'énergie d'un état atomique excité devient égale à un multiple entier de l'énergie du photon laser.

Une transition à N photons, processus non linéaire, fournit à l'expérimentateur un moyen d'étudier la cohérence du champ électromagnétique laser, et notamment de détecter les fonctions d'autocorrélation d'ordre supérieur du champ / 25 /. Généralement, l'importance des propriétés statistiques de la lumière laser croît avec l'ordre N du processus considéré / 14, 15, 25, 28 /. Elle apparut entre autres dans l'expérience de Lu Van / 29 / : la mesure expérimentale de la probabilité d'ionisation à 6 photons de l'atome d'hydrogène donna une valeur supérieure d'environ trois ordres de grandeur à la valeur calculée / 22b, 24c /, alors que dans le cas particulier de l'atome d'hydrogène on pouvait s'attendre à une très bonne précision des calculs théoriques. Le désaccord s'explique en prenant en compte les propriétés statistiques de la lumière laser utilisée, fortement multimode, ce qui impliquait / 25 / de multiplier par N! = 720 la probabilité d'ionisation calculée pour un laser parfaitement cohérent. Par ailleurs, il s'avéra que dans le cas du claquage optique d'un gaz, le seuil de claquage est plus faible lorsque le laser utilisé est multimode / 30 /.

Le résultat de l'expérience de Lu Van amena Lecompte et Sanchez à entreprendre une étude systématique de l'influence de la cohérence temporelle du laser sur la probabilité d'ionisation non résonnante à N photons des gaz rares. Le laser utilisé était à verre dopé au Néodyme (avec donc $10 < N \leqslant 22$). Les résultats de cette étude / 31-33 / montrèrent un bon accord d'ensemble entre l'expérience et la théorie des perturbations à l'ordre N, moyennant la prise en compte de corrélations partielles entre modes longitudinaux voisins du laser. Essentiellement, la probabilité d'ionisation dans le cas non résonnant est proportionnelle à la fonction d'autocorrélation d'ordre N du champ laser, et le facteur multiplicatif dû à l'incohérence temporelle augmente continûment de 1 à N! lorsque le nombre des modes longitudinaux du laser augmente / 28 /.

Ces points étant bien acquis, il était naturel de chercher à étendre la compréhension du rôle de la cohérence temporelle au domaine résonnant, en réalisant une expérience analogue sur un processus d'I.M.P.R. ; cela impliquait notamment la mise au point d'un laser de puissance qui soit simultanément à nombre de modes variable, et continûment accordable dans une bande de longueur d'onde suffisante pour explorer une résonance. Muni d'un tel laser, on peut tracer une famille de profils de résonance donnant un signal proportionnel au nombre d'atomes ionisés en fonction de la longueur d'onde, pour plusieurs largeurs de raie laser ; puis on détermine, par comparaisons entre les différents profils, les rôles des différents paramètres en jeu : voilà, sommairement décrits, la motivation et le principe de l'étude que nous avons entreprise au Service de Physique Atomique de Saclay, en 1979. Nous avons choisi d'effectuer nos expériences sur l'ionisation à 4 photons de l'état fondamental 6S de l'atome de Césium, avec résonance à 3 photons sur le niveau 6F. Ce processus s'est imposé à nous comme "meilleur candidat" pour plusieurs raisons convergentes détaillées plus loin, physiques et technologiques.

L'objet du présent mémoire est donc la description de ces expériences et l'interprétation de leurs résultats, en prenant soin de les rattacher, pour une meilleure compréhension, à tout leur contexte. A ces fins, ce mémoire comprendra les parties suivantes :

- La partie I est consacrée à une revue de la notion de cohérence optique et des propriétés particulières à cet égard des lasers, ce qui nous mène à un examen des différents modèles mathématiques des champs laser monomode et multimode. Les modèles ainsi dégagés seront utilisés plus loin pour le traitement théorique de l'I.M.P.R. en champ laser multimode.

- La partie II replace nos expériences dans le cadre plus général de la physique connue de l'ionisation multiphotonique ; elle décrit brièvement les résultats d'expériences connexes sur lesquelles nous nous sommes appuyés et retrace par là-même les raisons qui nous ont amenés à choisir l'ionisation résonnante à 3 + 1 photons du Césium.

- La partie III étudie d'un point de vue général les principales formulations théoriques applicables à nos expériences, mettant l'accent sur les résultats disponibles sous forme analytique tout en soulignant les limites de leur validité. Elle s'efforce également d'indiquer comment (et à quel prix) on pourrait s'affranchir de ces limites, dans le cadre de calculs rigoureux effectués numériquement.

- La partie IV est consacrée à la description de notre dispositif expérimental, et notamment aux problèmes posés par la réalisation du laser satisfaisant à notre "cahier des charges" particulier.

- Les parties V et VI décrivent les résultats de nos expériences quant aux propriétés comparées des différents profils de résonance obtenus en monomode et en multimode ; elles s'efforcent d'interpréter ces résultats en s'appuyant simultanément sur les considérations théoriques générales de la partie III et sur des calculs numériques plus particulièrement adaptés à nos conditions expérimentales.

- Enfin, on s'est appliqué, dans la partie VII, à tirer l'essentiel des enseignements de nos expériences et à juger de la qualité de l'accord avec la théorie. Est en particulier évoqué le problème de la séparabilité entre les effets de la statistique de l'éclairement et ceux de la largeur de raie.

CHAPITRE I

COHERENCE OPTIQUE ET MODELISATION DES CHAMPS LASERS

I.1 - PRÉLIMINAIRE

Une expérience d'ionisation multiphotonique consiste, en toute rigueur, en l'étude de l'action du milieu laser sur l'atome ou la molécule à ioniser, via le faisceau lumineux. Le traitement théorique rigoureux de cette interaction, id est l'introduction des degrés de liberté internes du milieu laser, serait impraticable. De plus, il ne répondrait pas à la raison d'être de ces expériences multiphotoniques, à savoir l'étude du comportement d'une particule isolée soumise à un champ électromagnétique intense, supposé donné à priori. Toute la physique du milieu laser doit donc être ramenée dans une modélisation statistique du faisceau laser incident.

La complexité du problème est en général occultée : dans une expérience d'ionisation non-résonnante, la probabilité d'ionisation s'obtient en multipliant la valeur calculée pour un champ cohérent par une constante dépendant uniquement de la distribution statistique de l'éclairement / 25 /. D'autre part, de nombreuses expériences utilisent des lasers monomodes longitudinaux et transverses, pour lesquelles la modélisation du faisceau laser par une onde monochromatique cohérente ne pose pas de problèmes. Si l'on désire, comme c'est notre cas, étudier les effets conjoints d'une résonance atomique et de la cohérence temporelle d'un laser à nombre de modes variable, le problème est entier : il nous faut trouver un modèle du champ laser qui soit d'une part suffisamment réaliste, et d'autre part utilisable mathématiquement, c'est-à-dire tel que l'on puisse résoudre, même approximativement, l'équation de Schrödinger de l'atome couplé au champ laser.

Pour ce faire, il nous faut tout d'abord rappeler certaines notions relatives à la cohérence du champ électromagnétique, et étudier les propriétés de cohérence respectives des sources de lumière naturelles et lasers. Nous déduirons de cette étude les modèles de champ utilisables, tout en prenant soin d'en souligner les limites. L'essentiel de cette discussion aura pour cadre le formalisme semi-classique, puisque le caractère quantique du rayonnement n'apparaît pas explicitement dans nos expériences.

I.2 - LA NOTION DE CHAMP ÉLECTROMAGNÉTIQUE ALÉATOIRE

Lorsque notre connaissance du champ électromagnétique entrant en jeu dans une expérience est incomplète, il faut, pour décrire ce champ classiquement, utiliser la théorie des processus aléatoires / 34 /. Dans une expérience où l'on s'intéresse essentiellement au champ électrique $\vec{E}(\vec{r},t)$, on renonce ainsi à connaître les valeurs exactes prises par le champ $\vec{E}$ pour chaque réalisation de l'expérience, mais on suppose connues les moyennes $\langle \vec{E}(\vec{r}_1, t_1) \ldots\ldots \vec{E}(\vec{r}_n, t_n) \rangle$ calculées sur un grand nombre de réalisations indépendantes. Si, en toute rigueur mathématique, un processus aléatoire n'est pas entièrement défini par les moments statistiques portant sur les valeurs prises en un nombre fini de points de l'espace-temps, on montre en fait que l'information manquante n'a pas d'influence sur le calcul des quantités comparables à une expérience / 35 /, et nous n'entrerons pas dans ces détails.

Une classe particulièrement importante de processus aléatoires, dont nous ferons usage par la suite, est celle des processus markoviens / 35, 36 /, c'est-à-dire tels que, $\vec{E}(t_o)$ étant connu, le comportement de $\vec{E}(t)$ après t_o soit statistiquement indépendant de l'histoire de $\vec{E}$ avant t_o. En effet, on dispose dans ce cas d'outils mathématiques plus puissants que pour les processus aléatoires les plus généraux.

Il sera commode d'introduire la séparation du champ en composantes de fréquences positives et négatives :

$$\vec{E}(\vec{r},t) = \int_{-\infty}^{o} \vec{E}_\omega(\vec{r}) \exp(i\omega t)\, d\omega + \int_{o}^{\infty} \vec{E}_\omega(\vec{r}) \exp(i\omega t)\, d\omega$$

$$= \vec{E}^-(\vec{r},t) + \vec{E}^+(\vec{r},t) \qquad (1)$$

La théorie quantique montre que, lors de l'interaction atome-champ, E^+ est responsable des processus d'émission de photons, E^- des processus d'absorption. Mais cette distinction n'a de sens physique que si l'on tient compte de la nature quantique du champ électromagnétique. Pour nous, ce sera une simple commodité.

Nous nous restreindrons ici au cas où la largeur spectrale $\Delta\nu_L$ de la lumière est beaucoup plus faible que la fréquence optique moyenne ν_o (sources quasi-monochromatiques). Cette condition :

$$\Delta\nu_L \ll \nu_o \tag{2}$$

est bien vérifiée pour presque toutes les sources lasers, ainsi que pour les lampes spectrales de l'optique classique.

On pose donc :

$$\vec{E}^+ (\vec{r},t) = \left\{ \int_o^\infty \vec{E}_\omega (\vec{r}) \exp(i(\omega-\omega_o)t)d\omega \right\} . \exp(i\omega_o t)$$

$$= \vec{\epsilon} (\vec{r},t) \exp (i\omega_o t) \tag{3}$$

Cette écriture sépare les variations rapides et lentes de $\vec{E} (\vec{r},t)$. Nous négligerons par la suite le caractère vectoriel du champ, pour plus de simplicité. On supposera par exemple que le champ laser est polarisé linéairement selon l'axe Oz.

On peut alors définir la fonction d'autocorrélation $G^{(m,n)}$ du champ en fonction de l'amplitude complexe $\epsilon(\vec{r},t) = \epsilon_x + i\,\epsilon_y$ par la formule :

$$G^{(m,n)} (\vec{r}_1, t_1 ; \ldots\ldots ; \vec{r}_{m+n} , t_{m+n}) =$$

$$= < \epsilon(\vec{r}_1, t_1) \ldots \epsilon(\vec{r}_m, t_m) . \epsilon^* (\vec{r}_{m+1}, t_{m+1}) \ldots \epsilon^* (\vec{r}_{m+n}, t_{m+n}) >$$

(4)

Remarquons tout de suite que si m diffère de n, $G^{(m,n)}$ s'annule lorsqu'on ne dispose d'aucune information sur la phase absolue du champ optique, ce qui est le cas pour les expériences décrites dans ce mémoire, ainsi que pour toutes les expériences d'optique jusqu'à une date relativement récente. Nous nous limiterons donc ici à l'étude des fonctions de corrélation d'ordre 2n $G^{(n,n)}$; la fonction de corrélation à 2 temps nous sera particulièrement utile :

$$G^{(n,n)}(\vec{r}_1, t_1 ; \vec{r}_2, t_2) = \langle \epsilon^n(\vec{r}_1, t_1) \cdot \epsilon^{*n}(\vec{r}_2, t_2) \rangle \qquad (5)$$

De plus, nous nous restreindrons aux champs stationnaires, c'est-à-dire tels que, pour tout n, les fonctions de corrélation soient invariantes par translation temporelle :

$$G^{(n,n)}(\vec{r}_1, t_1 ; \dots ; \vec{r}_n, t_n ; \dots ; \vec{r}_{2n}, t_{2n}) = G^{(n,n)}(\vec{r}_1, t_1 + \tau ; \dots ; \vec{r}_n, t_n + \tau ; \dots ; \vec{r}_{2n}, t_{2n} + \tau) \qquad (6)$$

Donnons des exemples de fonctions de corrélations ayant des interprétations physiques simples :

- la moyenne statistique de l'éclairement vaut :

$$\langle I(\vec{r},t) \rangle = \varepsilon_o c \langle E^2(\vec{r}, t) \rangle$$

$$= \varepsilon_o c \left\langle \left| \epsilon \exp(i\omega_o t) + \epsilon^* \exp(-i\omega_o t) \right|^2 \right\rangle = 2 \varepsilon_o c \langle \epsilon\epsilon^* \rangle$$

$$= 2 \varepsilon_o c\, G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}, t) \qquad (7)$$

en abandonnant les termes oscillant au double de la fréquence optique.

- la probabilité de photoionisation par unité de temps d'un atome situé au point $\vec{r}$ vaut / 37 / :

$$\frac{dP^{ION}}{dt} = \sigma_1 \, G^{(1,1)} (\vec{r}, t ; \vec{r}, t) \propto < I (\vec{r},t) > \qquad (8)$$

- la probabilité d'ionisation non-résonnante à N photons par unité de temps d'un atome situé au point $\vec{r}$ vaut / 25 / :

$$\frac{dP^{ION}}{dt} = \sigma_N \, G^{(N,N)} (\vec{r}, t ; \ldots ; \vec{r}, t) \propto < I^N(\vec{r},t) > \qquad (9)$$

- dans une expérience de corrélation de photons, la probabilité conjointe de détection de deux photons aux points $(\vec{r}_1, t_1)$ et $(\vec{r}_2, t_2)$ est donnée par / 37 / :

$$\frac{\delta^2 P}{\delta t_1 \, \delta t_2} = \sigma_1^{\,2} \, . \, G^{(2,2)} (\vec{r}_1, t_1 ; \vec{r}_2, t_2 ; \vec{r}_1, t_1 ; \vec{r}_2, t_2)$$

$$\propto < I (\vec{r}_1, t_1) \, I (\vec{r}_2, t_2) > \qquad (10)$$

Pour les processus aléatoires stationnaires, le théorème de Wiener-Khintchine / 36 / permet de plus de relier la densité spectrale de puissance $P (\vec{r}, \omega)$ du champ à la fonction de corrélation $G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}, t')$:

$$P (\vec{r},\omega) = \frac{\varepsilon_o c}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp (- i (\omega-\omega_o) \tau) \, . \, G^{(1,1)} (\vec{r}, t ; \vec{r}, t + \tau) \, d\tau \qquad (11)$$

Si la fonction $G^{(1,1)} (\vec{r},t ; \vec{r}, t + \tau)$ a une largeur caractéristique τ_c telle que :

$$G^{(1,1)} (\vec{r}, t ; \vec{r}, t + \tau_c) \cong \frac{1}{e} \, G^{(1,1)} (\vec{r}, t ; \vec{r}, t) \qquad (12)$$

on sait d'après les propriétés usuelles de la transformée de Fourier que l'ordre de grandeur de la largeur spectrale du champ est donné par :

$$\Delta\nu_L \sim 1/\tau_c \qquad (13)$$

Par inversion de (11), on a :

$$G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}, t+\tau) = \frac{1}{2\varepsilon_o c} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i(\omega-\omega_o)\tau)\, P(\vec{r},\omega)\, d\omega \qquad (14)$$

Signalons que cette dernière égalité n'a pas en général d'analogue pour les fonctions de corrélation d'ordres plus élevés et que la connaissance du spectre ne suffit donc pas pour caractériser complètement un champ optique stationnaire.

I.3 - LA NOTION DE COHÉRENCE OPTIQUE

Les ouvrages d'enseignement introduisent le plus souvent la notion de cohérence optique en se basant sur l'expérience bien connue des franges d'Young (figure 1). Des considérations de géométrie élémentaire montrent que l'éclairement moyen en un point M de l'écran éloigné de x du plan médian de la figure est donné par :

$$\langle I(M,t) \rangle \propto \langle E(S_1, t-t_1) + E(S_2, t-t_2)^2 \rangle \qquad (15)$$

$$\propto \langle |\epsilon(S_1, t-t_1)|^2 \rangle + \langle |\epsilon(S_2, t-t_2)|^2 \rangle + 2\,\mathrm{Re}\left\{ \exp(i\omega_o (t_2 - t_1)) \cdot \right.$$

$$\left. \cdot\, G^{(1,1)}(S_1, t-t_1 ; S_2, t-t_2) \right\}$$

avec :

$$t_2 - t_1 = ax / cd \qquad (16)$$

On posera pour abréger :

$$\epsilon(S_1, t-t_1) = \epsilon_1 \quad ; \quad \epsilon(S_2, t-t_2) = \epsilon_2$$

$$G^{(1,1)}(S_1, t-t_1 ; S_2, t-t_2) = G_{12} \qquad (17)$$

C'est le dernier terme de (15) qui est responsable du phénomène d'interférence. On définit la visibilité v du système de franges en fonction

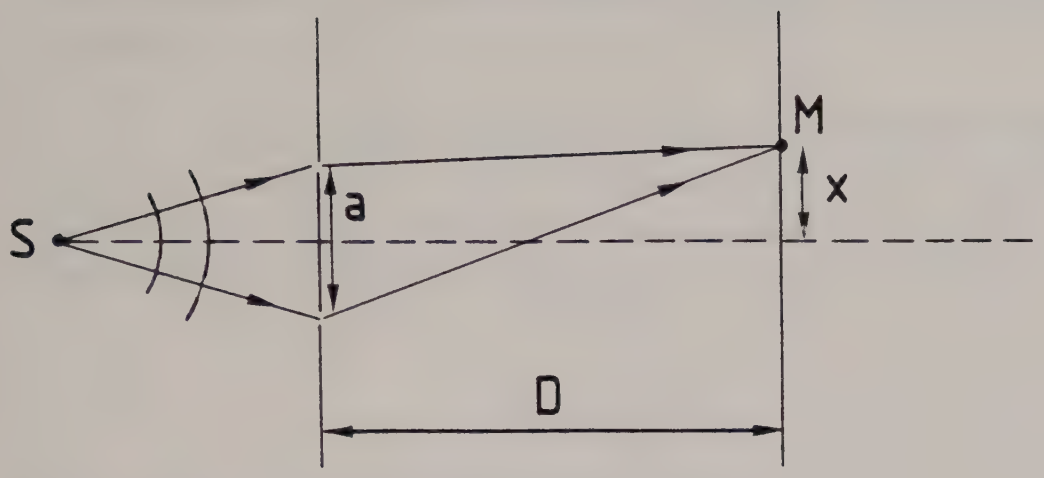


Figure 1 - Expérience des franges d'Young.

des éclairements maximal et minimal I_M et I_m observés sur l'écran :

$$v = \frac{I_M - I_m}{I_M + I_m} \tag{18}$$

avec :

$$\begin{aligned} I_M &= 2\,\varepsilon_o c \left[\langle |\epsilon_1|^2 \rangle + \langle |\epsilon_2|^2 \rangle + 2\,|G_{12}| \right] \\ I_m &= 2\,\varepsilon_o c \left[\langle |\epsilon_1|^2 \rangle + \langle |\epsilon_2|^2 \rangle - 2\,|G_{12}| \right] \end{aligned} \tag{19}$$

et l'on a donc :

$$v = \frac{2\,|G_{12}|}{\langle |\epsilon_1|^2 \rangle + \langle |\epsilon_2|^2 \rangle} \tag{20}$$

Il est facile d'obtenir une borne supérieure pour $|G_{12}|$. De façon générale, on peut en effet écrire :

$$0 \leqslant \langle | \epsilon_2 - \frac{G_{21}}{\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle} \epsilon_1 |^2 \rangle =$$

$$= \frac{1}{(\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle)^2} \{ (\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle)^2 . \langle | \epsilon_2 |^2 \rangle - G_{12}{}^2 \langle | \epsilon_1 |^2 \rangle \} \qquad (21)$$

$$= \frac{1}{\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle} (\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle . \langle | \epsilon_2 |^2 \rangle - |G_{12}|^2)$$

On voit donc qu'on a toujours :

$$|G_{12}| \leqslant \sqrt{\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle . \langle | \epsilon_2 |^2 \rangle} \qquad (22)$$

Pour le cas d'égalité, le contraste des franges atteint sa valeur maximale, et l'on a simultanément :

$$v = v_{max} = \frac{2 \sqrt{\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle . \langle | \epsilon_2 |^2 \rangle}}{\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle + \langle | \epsilon_2 |^2 \rangle} \qquad (23)$$

$$|G_{12}| = \left(\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle . \langle | \epsilon_2 |^2 \rangle \right)^{1/2} \qquad (24)$$

Jusqu'aux travaux de Glauber (1963) / 38 /, l'égalité (24) constituait la définition généralement acceptée de la cohérence optique, un champ optique étant cohérent s'il vérifie (24) pour tout couple de points de l'espace-temps. Pour un tel champ, on a :

$$\epsilon_2 = \frac{G_{21}}{\langle | \epsilon_1 |^2 \rangle} . \epsilon_1 \qquad (25)$$

puisque le module carré de la différence est nul en moyenne. Un champ cohérent est donc déterminé dans tout l'espace-temps par la valeur prise en un seul point, et s'écrit donc comme le produit d'une fonction déterministe de l'espace-temps par une variable aléatoire scalaire. Un champ déterministe vérifie évidemment les conditions (24) et (25) et est donc cohérent, étant bien entendu que l'on ne pourra mettre en évidence la présence de franges à contraste maximal que si l'on est capable de "photographier" l'écran

avec une constante de temps inférieure à l'inverse de la largeur spectrale du champ.

Si par contre le champ est aléatoire, l'égalité (25) doit être vérifiée séparément pour chaque réalisation du processus aléatoire. Par ailleurs, pour tout champ cohérent, on peut associer à chaque point une pseudo-amplitude complexe définie par :

$$A_i = \frac{G_{io}}{\sqrt{< |\epsilon_o|^2 >}} \tag{26}$$

où 0 est un point de référence quelconque.

En utilisant (25), on voit que pour tout couple de points :

$$G_{ij} = A_i \cdot A_j^* \tag{27}$$

A l'aide de ces pseudo-amplitudes, les fonctions de corrélation d'ordre 2 se calculent donc pour les champs cohérents comme pour les champs déterministes. On peut d'ailleurs redéfinir la notion classique de cohérence de la manière suivante : un champ est cohérent si on peut exhiber une pseudo-amplitude complexe telle que les fonctions de corrélation d'ordre 2 se calculent par la formule (27).

- Lien avec le spectre du champ

Un champ déterministe est cohérent quel que soit son spectre. Pour les champs stationnaires, la cohérence au sens de l'équation (27) équivaut simplement à la monochromaticité, à condition de se restreindre à une notion de cohérence purement temporelle, c'est-à-dire de ne pas considérer les corrélations entre les valeurs prises par le champ en différents points de l'espace. Pour un champ monochromatique stationnaire le théorème de Wiener-Khintchine permet en effet d'écrire :

$$P(\omega) = a\,\delta(\omega - \omega_o) \tag{28}$$

$$G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}, t + \tau) = \frac{a}{2\,\epsilon_o c} = G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}, t) \tag{29}$$

et le champ est donc cohérent. Réciproquement, si on suppose le champ cohérent, la relation (24) permet d'écrire :

$$G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}, t+\tau) = G^{(1,1)}(\vec{r}, 0 ; \vec{r}, \tau) = \langle |\epsilon(\vec{r},t)|^2 \rangle \cdot \exp(i\phi(\tau)) \tag{30}$$

et la pseudo-amplitude associée au champ s'écrit :

$$A(t) = \frac{G^{(1,1)}(\vec{r},t ; \vec{r},0)}{\sqrt{\langle |\epsilon(\vec{r},t)|^2 \rangle}} = \sqrt{\langle |\epsilon(\vec{r},t)|^2 \rangle} \cdot \exp(-i\phi(t)) \tag{31}$$

On peut alors écrire, grâce à la stationnarité et à l'équation (27) :

$$G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}, t+\tau) = \langle |\epsilon(\vec{r},t)|^2 \rangle \cdot \exp(i\phi(t+\tau) - i\phi(t)) = G^{(1,1)}(\vec{r}, 0 ; \vec{r}, \tau) = \langle |\epsilon(\vec{r}, t)|^2 \rangle \cdot \exp(i\phi(\tau) - i\phi(0)) \tag{32}$$

La fonction qui associe à t la quantité $\phi(t) - \phi(0)$ est donc additive, et il existe par conséquent une constante λ telle que :

$$\phi(t) = \phi(0) + \lambda t \tag{33}$$

et le théorème de Wiener-Khintchine (11) montre alors que le champ est monochromatique, de pulsation $\omega_o + \lambda$.

Cette notion de cohérence optique est bien sûr représentative d'un certain stade de la technologie expérimentale : absence de détections des fonctions de corrélation d'ordre supérieur, sources de lumière thermiques et stationnaires. C'est à partir de 1957 qu'apparaissent les expériences donnant accès à des fonctions de corrélation d'ordre supérieur du champ. Rappelons que la première expérience de ce type fut celle de Hanbury-Brown et Twiss (HBT) / 39 /, dont le principe consiste en la mesure de la corrélation entre les courants de sortie de deux photomultiplicateurs placés dans

deux faisceaux lumineux obtenus à partir d'une même source, à l'aide d'une lame semi-réfléchissante (figure 2). Le signal moyen $V(t)$ à la sortie du corrélateur est alors donné par :

$$V(t) \propto \langle I(S, t - t_1)\, I(S, t - t_2) \rangle \propto G^{(2,2)}(S, t - t_1 ; S, t - t_2 ; S, t - t_1 ; S, t - t_2) \tag{34}$$

avec :

$$\Delta = c\,\tau = c\,(t_2 - t_1) \tag{35}$$

où Δ représente la différence de marche optique entre $\overline{SP}_1$ et $\overline{SP}_2$ (figure 2). On verra que cette expérience permet de distinguer deux sources lumineuses de spectres identiques. Toutefois, les sources de lumière utilisées avant le laser (sources "thermiques") sont constituées d'un grand nombre de particules émettant indépendamment, et il résulte alors d'un théorème fondamental de la statistique / 2 / que le champ $\mathcal{E}(t)$ total résultant doit être décrit par

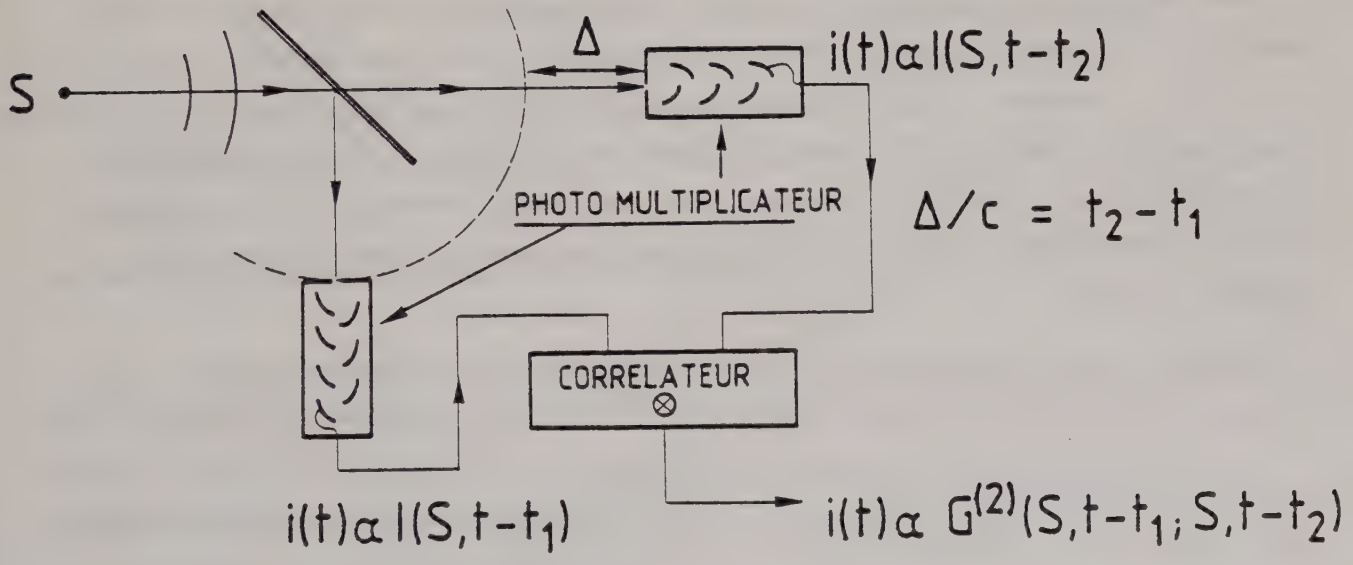


Figure 2 - Expérience de Hanbury-Brown et Twiss.

un processus aléatoire gaussien, ce qui implique la distribution de probabilité suivante pour l'amplitude complexe $\epsilon(\vec{r}, t)$:

$$P(\epsilon_x, \epsilon_y) = \frac{1}{\pi \langle|\epsilon|^2\rangle} \cdot \exp\left(-\frac{\epsilon_x^2 + \epsilon_y^2}{\langle|\epsilon|^2\rangle}\right) \tag{36}$$

Le théorème des moments pour les processus gaussiens / 34 / affirme alors que toutes les fonctions de corrélation d'ordre supérieur sont déterminées par la donnée de $G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}', t')$:

$$G^{(n,n)}(\vec{r}_1, t_1 ; \ldots ; \vec{r}_{2n}, t_{2n}) = \sum_P \cdot \prod_{i=1}^{2n} G^{(1,1)}(\vec{r}_i, t_i ; \vec{r}_{n+P(i)}, t_{n+P(i)}) \tag{37}$$

la sommation portant sur toutes les permutations P des n premiers entiers. Donc grâce au théorème de Wiener-Khintchine, toutes les propriétés statistiques d'une telle lumière sont déterminées univoquement par le spectre.

Afin de prendre en compte l'apparition des sources de lumière laser et des expériences permettant l'accès à des fonctions de corrélation d'ordre supérieur du champ, Glauber / 38 / a introduit en 1963 une nouvelle définition de la cohérence optique. Cette définition consiste simplement en la généralisation de la formule (27) aux fonctions de corrélation d'ordre arbitraire : un champ est dit cohérent si on peut exhiber une pseudo-amplitude complexe $A(\vec{r},t)$ permettant de calculer toutes les fonctions de corrélation de la façon suivante :

$$G^{(n,n)}(\vec{r}_1, t_1 ; \ldots ; \vec{r}_{2n}, t_{2n}) = \prod_{i=1}^{n} A(\vec{r}_i, t_i) \prod_{i=n+1}^{2n} A^*(\vec{r}_i, t_i) \tag{38}$$

Dans ce mémoire, le terme "cohérent" aura désormais le sens donné par Glauber, sauf précision contraire. Cette définition implique notamment que l'éclairement en un point donné de l'espace-temps est déterministe :

$$\langle I^N(\vec{r}, t)\rangle = (2\varepsilon_o c)^N \,|\, \epsilon(\vec{r}, t)|^{2N} = (\langle I(\vec{r}, t)\rangle)^N \tag{39}$$

Si donc l'on règle à $\Delta = 0$ le dispositif de l'expérience HBT (figure 2) le signal V fourni par une source cohérente sera :

$$V(t) = k < I^2 (S, t - t_1) > = k (< I (S, t - t_1) >)^2 \qquad (40)$$

Par contre, pour une source thermique, le théorème des moments montre qu'on a :

$$< I^N (S, t) > = N! (< I (S, t) >)^N \qquad (41)$$

et on obtiendra un signal :

$$V(t) = 2 k (< I (S, t - t_1) >)^2 \qquad (42)$$

Ces résultats impliquent qu'une lumière gaussienne n'est jamais cohérente, indépendamment de sa largeur spectrale : la nouvelle notion de cohérence optique est beaucoup plus forte que la précédente. On convient de dire qu'un champ est cohérent à l'ordre 2N si l'égalité (38) est vérifiée pour tout $n \leqslant N$. La notion classique de cohérence correspond donc à la cohérence d'ordre 2 au sens de Glauber.

D'autre part, pour tout champ cohérent (au sens de Glauber), on a :

$$\left| G^{(n,n)} (\vec{r}_1, t_1 ; \ldots ; \vec{r}_{2n}, t_{2n}) \right|^2 = \prod_1^{2n} G^{(1,1)} (\vec{r}_i, t_i ; \vec{r}_i, t_i) \qquad (43)$$

qui est une conséquence immédiate de l'équation (38).

Réciproquement, un champ vérifiant (43) est nécessairement cohérent : en effet, l'équation (43) est une généralisation de (24), et le champ est donc cohérent à l'ordre 2. Les amplitudes complexes prises par le champ en différents points de l'espace-temps sont donc reliées par (25) :

$$\epsilon(\vec{r}_2, t_2) = \frac{G^{(1,1)} (\vec{r}_2, t_2 ; \vec{r}_1, t_1)}{< | \epsilon(\vec{r}_1, t_1) |^2 >} \epsilon(\vec{r}_1, t_1)$$

Il est alors facile de montrer que les pseudo-amplitudes définies par la relation (26) vérifient l'équation de définition de la cohérence au sens de Glauber (38) :

$$A(\vec{r},t) = \frac{G^{(1,1)}(\vec{r}, t ; \vec{r}_o, t_o)}{(<|\epsilon(\vec{r}_o,t_o)|^2>)^{1/2}} \qquad (44)$$

Au total, on voit que les champs cohérents s'écrivent comme produit d'un champ déterministe par un facteur de phase aléatoire, uniforme dans tout l'espace-temps. Nous allons voir maintenant que le champ d'un laser monomode très au-dessus du seuil est cohérent.

I.4 - PROPRIÉTÉS STATISTIQUES DES SOURCES LASERS

On sait qu'un laser consiste en une cavité optique résonnante contenant un milieu amplificateur et délimitée par deux miroirs. Le champ électromagnétique interne peut être développé selon les modes propres du résonateur optique :

$$E(\vec{r},t) = \mathrm{Re}\left\{ \sum_m a_m(t)\, \epsilon_m(\vec{r}) \cdot \exp(i\omega_m t) \right\} \qquad (45)$$

Chaque mode correspond à une fréquence optique différente, et à une configuration géométrique différente pour le champ laser intracavité. Du fait que les noeuds d'un mode peuvent correspondre aux ventres d'un autre mode, chaque mode est en partie couplé à des populations atomiques différentes, et donc les différents modes sont en grande partie découplés / 40 /. On conçoit aisément que ce découplage n'est pas total, et c'est bien ce que montre un traitement théorique rigoureux du milieu laser / 41 /. Toutefois, pour un nombre suffisant de modes, on obtient une bonne modélisation du champ laser total en supposant qu'il résulte de l'addition de n amplitudes partielles statistiquement indépendantes, et obéit donc à une statistique gaussienne / 32 /.

Par contre, si on suppose qu'un seul mode donne lieu à émission laser (laser monomode), par exemple à cause des pertes trop fortes infligées

aux autres modes par des dispositifs intracavité de sélection en longueur d'onde, la situation sera très différente. On a alors :

$$\mathcal{E}(t) = a_m(t)\ \mathcal{E}_m(\vec{r}) \tag{46}$$

On peut montrer que la dynamique d'un tel mode est bien décrite, dans une gamme d'intensités lasers s'étendant largement de part et d'autre du seuil d'émission, par l'équation suivante / 42 / :

$$\frac{d\mathcal{E}}{dt} = -p\mathcal{E} + \mathcal{E}(\gamma_o - S|\mathcal{E}|^2) + a\,\xi_c(t) \tag{47}$$

Dans cette formule :

- p représente les pertes de la cavité en l'absence de pompage, par absorption ou transmission des miroirs,
- γ_o représente le gain dû au pompage, en champ faible.
- $S|\mathcal{E}|^2$ représente un terme de saturation du gain optique, qui n'apparaît que lorsque l'amplitude $\mathcal{E}$ du mode est assez forte. On sait, par exemple, que pour une raie laser homogène le gain s'exprime par :

$$\gamma = \gamma_o \cdot \frac{1}{1 + I/I_S} \cong \gamma_o - \frac{2\,\varepsilon_o\,\gamma_o\,c}{I_S}\,|\mathcal{E}|^2 \tag{48}$$

  I_S représentant l'intensité de saturation / 43 /. Cette équation, valable en principe pour $I \ll I_S$, permet en fait de décrire les phénomènes de façon qualitativement correcte dans une gamme s'éclairements s'étendant de part et d'autre de I_S.

- enfin, $a\,\xi_c(t)$ est une force de Langevin complexe, due à tous les processus incohérents couplés avec le mode laser : émission spontanée, couplage avec les phonons du réseau pour un laser à solide, diffusion de lumière par des particules intra-cavité, etc... On néglige le temps de cohérence de $\xi_c(t)$ devant tous les autres temps caractéristiques du système :

$$\langle \xi_c(t)\,\xi_c^*(t+\tau)\rangle = 2\,\delta(\tau) \quad ; \quad \langle \xi_c(t)\rangle = 0 \tag{49}$$

ξ_c (t) est alors une fonction "à corrélation microscopique", processus aléatoire markovien et stationnaire, qu'on suppose de plus gaussien (il résulte d'une multitude de causes indépendantes).

L'équation de Van der Pol / 47 / a été employée tout d'abord pour décrire la dynamique d'oscillateurs radiofréquences / 44 /. Il se trouve qu'elle décrit aussi bien la dynamique d'un laser monomode.

Un théorème de la théorie des processus aléatoires markoviens / 36 / permet de passer de l'équation de Van der Pol à l'équation de Fokker-Planck donnant l'évolution de la densité de probabilité $P(\mathcal{E}, t)$ de l'amplitude du champ :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \nabla_{\mathcal{E}} \cdot \left(\mathcal{E} (p - \gamma_o + S\,|\mathcal{E}|^2)\, P \right) + \frac{a^2}{2} \Delta P \qquad (50)$$

Si l'on cherche une solution indépendante du temps et de la phase pour cette équation, sous la forme :

$$P(\mathcal{E}, t) = f(r) \quad , \quad \mathcal{E} = r \exp(i\phi) \qquad (51)$$

on obtient :

$$\frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \cdot (r^2 (p - \gamma_o + S\, r^2)\, f) + \frac{a^2}{2} \cdot \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial f}{\partial r} \right) = 0 \qquad (52)$$

$$f(r) = \frac{1}{N} \cdot \exp \left[- \frac{1}{a^2} (p - \gamma_o)\, r^2 + S \frac{r^4}{2} \right] \qquad (53)$$

Cette dernière expression permet de mettre en évidence l'existence d'un changement qualitatif pour $\mathcal{E}(t)$ lorsque γ_o devient supérieur à p, c'est-à-dire au seuil de l'effet laser. On a tracé sur la figure 3 l'allure de $P(\mathcal{E})$ pour différentes valeurs du paramètre sans dimension λ :

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{S}} \cdot \frac{\gamma_o - p}{a} \qquad (54)$$

Pour un système très en-dessous du seuil ($\lambda < 0$, $|\lambda| >> 1$), on voit que la répartition de probabilité de l'amplitude complexe est de type gaussien. Par contre, au-delà du seuil, la répartition de probabilité est

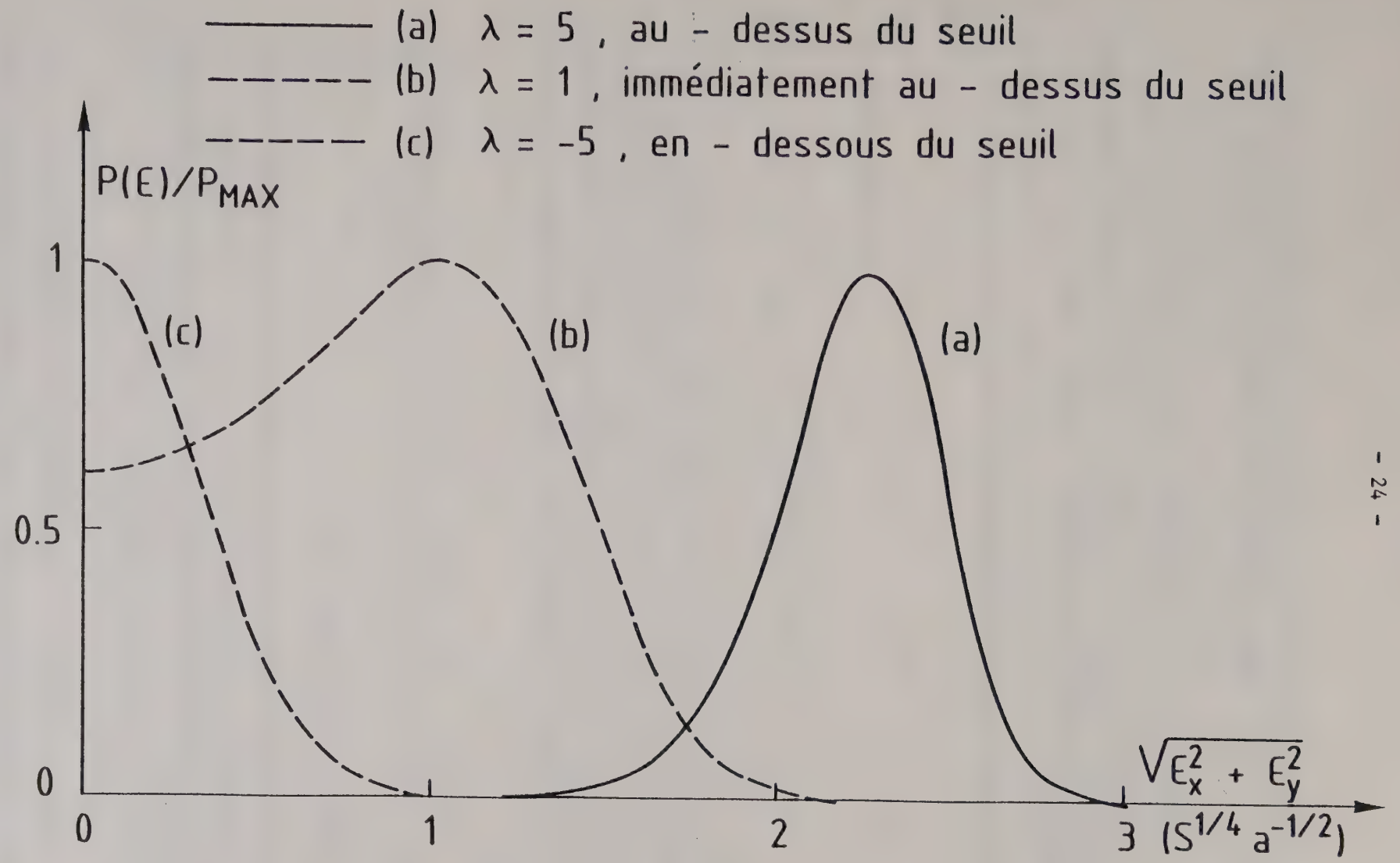


Figure I.3 - Loi de probabilité de l'amplitude du champ (laser monomode).

concentrée autour d'une valeur $|\mathcal{E}|$ non nulle. Donc l'éclairement instantané, au lieu de fluctuer de façon erratique comme en-dessous du seuil, se trouve stabilisé à une valeur bien précise. C'est là un comportement totalement différent de celui des sources thermiques ou des lasers multimodes, et qui est l'analogue, dans le domaine optique, des rayonnements produits par les oscillateurs radiofréquences ou microondes. Il y a un saut qualitatif dans la statistique du champ au franchissement du seuil laser.

En transformant l'expression (53), on a :

$$P(\mathcal{E}_x, \mathcal{E}_y) \cong \frac{1}{N'} \cdot \exp\left(-\left\{\frac{2(\gamma_o - p)}{a^2} \cdot (r - r_M)^2\right\}\right) \tag{55}$$

$$r_M = \left|\frac{\gamma_o - p}{S}\right|^{1/2} \tag{56}$$

Les fluctuations autour de l'éclairement moyen diminuent donc en raison inverse du gain non saturé γ_o, donc de la puissance de pompage. La phase ϕ du champ continue à subir un processus de diffusion dû à la force de Langevin a $\xi_c(t)$. Une analyse plus précise de l'équation (47) montrerait de même que la vitesse de diffusion de la phase est inversement proportionnelle à $\gamma_o - p$.

A la limite, très au-dessus du seuil, les fluctuations de l'éclairement et de la phase sont négligeables, et on peut considérer que :

- l'éclairement est parfaitement fixe,
- la phase est équirépartie entre 0 et 2π, mais elle ne varie pas au cours du temps pendant une réalisation donnée du processus. L'amplitude $\mathcal{E}$ est le produit d'une constante déterministe et d'un facteur de phase constant mais aléatoire.

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_o \exp(i\phi_o) \tag{57}$$

Dans cette limite, le champ émis par le laser monomode est donc bien cohérent. Le laser multimode par contre, du fait qu'il émet une lumière de type gaussien, ne peut être cohérent (cf. équations (39)-(42)).

I.5 - MODÉLISATION MATHÉMATIQUE DES CHAMPS LASERS

Les seuls champs aléatoires pour lesquels il est mathématiquement possible de résoudre les équations d'interaction avec l'atome sont, en pratique, les champs markoviens, en particulier ceux décrits par des équations de fluctuation du type (47), avec une force de Langevin au second membre. On va justement voir que l'on peut extraire facilement des calculs ci-dessus des modèles de champ laser décrivant raisonnablement les cas monomodes et multimodes.

a) Lasers monomodes

Le modèle évident pour le champ du laser monomode est l'onde cohérente monochromatique (CCM). La phase de l'onde peut être supposée équirépartie entre 0 et 2 π, puisqu'elle ne joue aucun rôle physique dans notre problème. Il sera également utile de disposer d'un modèle de champ sans fluctuations d'éclairement, mais avec une largeur spectrale non nulle grâce à des fluctuations de phase. Il suffit pour cela de reprendre le modèle du laser monomode, en gardant la diffusion aléatoire de la phase de l'onde tout en fixant l'éclairement $|\mathcal{E}|^2$. Ce modèle de champ à diffusion de phase (CDP) est décrit par les équations suivantes :

$$\begin{cases} E(t) = \mathcal{E}_o \exp(i\,\phi(t)) + c.c. \\ \mathcal{E}_o = \text{constante} \\ \dfrac{d\phi}{dt} = \sqrt{\gamma_L}\,.\,\xi(t) \quad ; \quad \langle \xi(t)\,\xi(t+\tau)\rangle = \delta(\tau) \end{cases} \tag{58}$$

γ_L caractérise la vitesse des fluctuations de phase (la notation se justifie plus bas). Examinons les propriétés statistiques du modèle CDP ; on note :

$$\Delta(\tau) = \phi(t+\tau) - \phi(t) \tag{59}$$

On a calculé dans l'Appendice A la densité de probabilité de $\Delta(\tau)$, et on en a déduit la fonction de corrélation à deux temps :

$$P(\Delta) = (2\pi\gamma_L\tau)^{-1/2} \cdot \exp(-\Delta^2/2\gamma_L|\tau|) \qquad (60)$$

$$G^{(n,n)}(t, t+\tau) = \epsilon_o^{2n} \exp(-n^2\gamma_L|\tau|/2) \qquad (61)$$

La variation de phase après un temps τ est donc une variable gaussienne, puisqu'elle résulte d'un nombre infini de variations infinitésimales indépendantes. Sa variance tend vers l'infini avec τ, de sorte que si l'on suppose la phase ϕ exactement connue à l'instant t_o, sa loi de probabilité conditionnelle converge pour les temps longs vers la répartition uniforme sur $0, 2\pi$.

On peut déduire de la relation (11) la densité spectrale de puissance, grâce au théorème de Wiener-Khintchine :

$$P(\omega) = 2\varepsilon_o c \cdot |\epsilon_o|^2 \cdot \frac{\gamma_L}{2\pi} \cdot \frac{1}{(\omega-\omega_o)^2 + \frac{\gamma_L^2}{4}} \qquad (62)$$

Le spectre est donc de forme lorentzienne, et γ_L représente sa largeur totale à mi-hauteur (LTMH).

b) Cas des lasers multimodes

On attend essentiellement d'un bon modèle de laser multimode :

- qu'il reproduise la statistique gaussienne de ϵ mentionnée plus haut ;
- qu'il traduise l'élargissement spectral dû à la superposition de plusieurs modes de fréquences différentes.

On voit sur la figure 3 que, pour le laser monomode très en-dessous du seuil, la répartition est gaussienne. On peut donc (de façon assez artificielle) modéliser le laser multimode par une équation du type (47) où l'on néglige le facteur S de saturation du gain. On part des équations suivantes :

$$\begin{cases} \frac{d\epsilon}{dt} + \frac{\gamma_L}{2}\epsilon = \sqrt{\frac{\gamma_L \epsilon_o^2}{2}} \cdot \xi_c(t) \\ \\ \langle \xi_c(t) \cdot \xi_c^*(t+\tau) \rangle = 2\delta(\tau) \quad ; \quad \langle \xi_c(t) \rangle = 0 \end{cases} \qquad (63)$$

Les notations sont justifiées plus bas. On a rejeté dans l'Appendice A le calcul de la fonction de Green de $\mathcal{E}$, $P(\mathcal{E}, t \mid \mathcal{E}_i, t_i)$ de la loi de probabilité stationnaire et de la fonction de corrélation d'ordre 2n à deux temps ; on trouve :

$$P(\mathcal{E}, t+\tau \mid \mathcal{E}_i, t) = \frac{1}{\pi \sigma^2(\tau)} \cdot \exp\left(- \frac{\left| \mathcal{E} - \mathcal{E}_i \exp(-\gamma_L \tau/2) \right|^2}{\sigma^2(\tau)}\right) \tag{64}$$

$$\sigma^2(\tau) = \mathcal{E}_o^2 \cdot (1 - \exp(-\gamma_L \tau)) \tag{65}$$

$$P(\mathcal{E}, t) = \frac{1}{\pi \mathcal{E}_o^2} \cdot \exp(-|\mathcal{E}|^2/\mathcal{E}_o^2) \tag{66}$$

$$G^{(n,n)}(t, t+\tau) = n! \; |\mathcal{E}_o|^{2n} \cdot \exp(-n \gamma_L |\tau|/2) \tag{67}$$

On a donc bien une statistique gaussienne de l'amplitude. Si la probabilité est concentrée en un point à l'instant t, sa répartition aux instants ultérieurs est gaussienne, de moyenne relaxant vers 0 avec une vitesse γ_L, de variance croissant vers la valeur limite $\mathcal{E}_o^2$. On obtient encore le spectre grâce au théorème de Wiener-Khintchine :

$$P(\omega) = 2 \varepsilon_o c \cdot |\mathcal{E}_o|^2 \cdot \frac{\gamma_L}{2\pi} \cdot \frac{1}{(\omega - \omega_o)^2 + \frac{\gamma_L^2}{4}} \tag{68}$$

On a donc un champ dont le spectre et l'éclairement moyen sont identiques à ceux du modèle CDP, mais de statistique gaussienne. Ce modèle de champ gaussien lorentzien (CGL) a des fonctions de corrélation d'ordre supérieur qui sont, toutefois, différentes de celles du modèle C.D.P. On verra plus loin que la résolution de l'équation de Schrödinger avec le modèle C.G.L. est possible mais ardue, et on peut obtenir des renseignements intéressants en se contentant de traiter la statistique de l'éclairement, sans la largeur spectrale.

Si l'on suppose que le temps caractéristique des fluctuations de $\mathcal{E}$ est très grand devant la durée de l'expérience d'interaction atome-champ,

on peut pour résoudre l'équation de Schrödinger en champ gaussien se borner à un calcul de la solution en champ cohérent, puis moyenner ensuite sur la statistique de l'éclairement. On obtient ainsi un modèle de champ gaussien monochromatiques (C.G.M.). Un tel modèle s'impose par exemple pour une expérience de comptage de photons, si la fenêtre de détection temporelle utilisée est courte devant le temps caractéristique de fluctuation du laser.

Il va de soi qu'en faisant un tel calcul lorsque la condition de validité n'est pas réalisée, on néglige l'effet propre de la largeur spectrale. Ce modèle "en bande nulle" peut bien sûr être utilisé pour d'autres statistiques que la gaussienne.

I.6 - LIENS AVEC LES ÉTATS DU CHAMP QUANTIFIÉ

Pour quantifier le champ électromagnétique on montre tout d'abord, par transformation de Fourier, qu'il est équivalent dynamiquement à une famille infinie d'oscillateurs harmoniques / 45 /. Pour rendre cette famille dénombrable, on utilise un artifice consistant à annuler le champ en dehors d'un "volume de quantification" cubique de côté L. On fait ensuite tendre L vers l'infini pour le calcul des quantités mesurables. Il suffit alors de quantifier séparément chaque oscillateur harmonique, id est chaque mode du champ quantifié.

Le champ électrique E peut alors s'exprimer en fonction des opérateurs création et annihilation des oscillateurs :

$$E(\vec{r}, t) = i \sum_{\text{modes}} \left(\frac{\hbar\omega_k}{2\varepsilon_o L^3}\right)^{1/2} . a_k \exp(i\vec{k} . \vec{r} - i\omega t) + \text{h.c.} \qquad (69)$$

Dans l'étude des interactions entre la matière et le champ quantifié, on suppose le plus souvent qu'un seul des oscillateurs est excité. L'opérateur-densité du champ s'exprime alors sur la base des états stationnaires de cet oscillateur :

$$\rho = \sum_{p,q} \rho_{pq} \, | p > < q | \qquad (70)$$

$$a^+ a \, | p > = p \, | p > \qquad (71)$$

Ces états correspondent aux champs à bande spectrale nulle en semi-classique, tels que les modèles C.C.M. et C.G.M. Il suffit donc de donner la répartition statistique de l'amplitude complexe pour caractériser complètement les analogues classiques.

Considérons les trois états quantiques couramment utilisés :

- l'état cohérent ; il est donné par / 46 / :

$$\rho_{COH} = |\alpha > < \alpha|$$

$$|\alpha> = \sum_n \exp\left(-\frac{|\alpha|^2}{2}\right) \cdot \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} \cdot |n > \qquad (72)$$

et vérifie l'équation aux valeurs propres :

$$a \mid \alpha> = \alpha \mid \alpha > \qquad (73)$$

C'est donc, d'après les principes de la mécanique quantique, un état d'amplitude bien définie. Il correspond donc à l'onde monochromatique cohérente, avec phase et éclairement certains (modèle C.C.M.).

- l'état chaotique, donné sur la base des états de Fock en fonction du nombre moyen de photons <n> par :

$$\rho_{CH} = \frac{1}{1 + <n>} \sum_p \cdot \left(\frac{<n>}{1 + <n>}\right)^p \mid p > < p \mid \qquad (74)$$

C'est l'état d'entropie maximale, pour lequel les photons obéissent à une statistique de Bose-Einstein / 47 /. En comparant les deux relations (72) et (74), on obtient :

$$\rho_{CH} = \frac{1}{\pi <n>} \cdot \int_C \exp\left(- |\alpha|^2 / <n>\right) \cdot |\alpha> <\alpha| \; d^2\alpha \qquad (75)$$

L'état chaotique correspond donc à une distribution gaussienne de l'amplitude complexe, et donc au modèle C.G.M.

- l'état à n photons (vecteur propre de l'hamiltonien de l'oscillateur) :

$$\rho_n = |n><n| \tag{76}$$

L'énergie du champ est parfaitement déterminée, d'autre part l'absence d'éléments non-diagonaux implique classiquement l'absence de toute information sur la phase. Un modèle classique possédant ces propriétés est bien sûr le modèle C.C.M. à éclairement certain et phase équirépartie. Mais l'analogue quantique de C.C.M. est naturellement représenté par :

$$\rho_{CCM} = \int_0^{2\pi} |\alpha = \sqrt{n}\exp(i\phi)><\alpha = \sqrt{n}\exp(i\phi)| \cdot \frac{d\phi}{2\pi} \tag{77}$$

$$= \int \delta(|\alpha|^2 - n)\,|\alpha><\alpha|\,\frac{d^2\alpha}{\pi} \tag{78}$$

Or, malheureusement, les deux opérateurs densité (76) et (77) sont en fait différents. Si l'on écrit ρ_n sous une forme analogue à (75) :

$$\rho_n = |n><n| = \int_C T(\alpha)\,|\alpha><\alpha|\,d^2\alpha \tag{79}$$

on montre / 48 / que $T(\alpha)$ est nécessairement une distribution hautement singulière et concentrée au point origine du plan complexe. Il est donc impossible d'assimiler ρ_n et ρ_{CCM}, dans le cadre de la théorie habituelle des distributions / 49 / tout au moins.

Toutefois, on peut réécrire l'équation (77) sous la forme :

$$\rho_{CCM} = \sum_p \exp(-n)\,\frac{n^p}{p!}\,|p><p|$$

Le nombre p de photons présents dans le mode obéit donc à une loi statistique de Poisson, et par conséquent la dispersion relative du nombre de photons tend vers 0 lorsque le nombre moyen de photons (soit n) augmente. En fait, la dispersion relative est donnée par :

$$\frac{\sqrt{(p - <p>)^2}}{<p>} = \frac{1}{\sqrt{n}} \tag{81}$$

Or, pour le calcul d'une quantité physique, on fait simultanément tendre vers l'infini le nombre de photons et le volume de quantification, en

leur conservant un rapport adéquat. Dans cette limite, la dispersion donnée par (81) est négligeable, et on peut assimiler l'état à n photons et le modèle C.C.M. à phase équirépartie.

I.7 - Conclusions

On a donc présenté ci-dessus un ensemble de quatre modèles, dont les paramètres sont rassemblés dans la Table I.1 :

- l'onde monochromatique cohérente, d'éclairement fixe (C.C.M.),
- le modèle C.D.P., à éclairement fixe mais possédant une largeur spectrale arbitraire, à forme de raie lorentzienne,
- le modèle C.G.M., monochromatique à statistique gaussienne,
- le modèle C.G.L., de statistique gaussienne et de largeur spectrale arbitraire, toujours à forme de raie lorentzienne.

Ces quatre modèles sont définis mathématiquement de la façon la plus souhaitable pour pouvoir résoudre les équations de l'interaction atome-champ. En principe, les modèles C.C.M. et C.G.L. sont suffisants pour notre propos, en modélisant respectivement le laser monomode et le laser multimode. Toutefois, il se révèle fort utile de pouvoir dire, en se basant sur des résultats théoriques calculés avec les modèles C.D.P. et C.G.M., quelles caractéristiques de nos résultats expérimentaux en multimode sont dues respectivement à la statistique de l'éclairement et à la largeur spectrale non nulle.

Les modélisations des champs laser ainsi définies ne sont pas parfaites. Ainsi, dans un laser multimode, la densité spectrale de puissance consiste en une série de pics étroits correspondant chacun à un mode donné. C'est l'enveloppe des sommets des pics qui définit alors la forme de raie laser. La forme de cette enveloppe n'est pas, en réalité, lorentzienne ; la décroissance de la puissance spectrale dans les ailes est beaucoup plus rapide que pour une lorentzienne, et on décrit en général la raie laser comme étant de forme gaussienne. Cette différence pourrait induire les désaccords entre les signaux d'ions calculés théoriquement et les résultats

TABLE I.1

Principales propriétés des différents modèles de champs électromagnétiques lasers

Propriété \ Modèle	Champ cohérent monochromatique (C.C.M.)	Champ à diffusion de phase (C.D.P.)	Champ gaussien monochromatique (C.G.M.)	Champ gaussien lorentzien (C.G.L.)
Equations de base	$\mathcal{E}(t) = \text{Constante} = \mathcal{E}_o$	$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_o \exp(i\phi(t))$ $d\phi/dt = \sqrt{\gamma_L}\,\xi(t)$ $\langle \xi(t)\,\xi(t+\tau)\rangle = \delta(\tau)$	$\mathcal{E}(t)$ = Constante aléatoire	$\frac{d\mathcal{E}}{dt} + \frac{\gamma_L}{2}\mathcal{E} = \frac{\sqrt{\gamma_L}\,\mathcal{E}_o^2}{2}\,\xi_c(t)$ $\langle \xi_c(t)\,\xi_c^*(t+\tau)\rangle = 2\delta(\tau)$
Distribution statistique de $\mathcal{E}(t)$	$\delta(\lvert\mathcal{E}\rvert - \lvert\mathcal{E}_o\rvert)$	$\delta(\lvert\mathcal{E}\rvert - \lvert\mathcal{E}_o\rvert)$	$\frac{1}{\pi\lvert\mathcal{E}_o\rvert^2}\exp\left(-\frac{\lvert\mathcal{E}\rvert^2}{\lvert\mathcal{E}_o\rvert^2}\right)$	$\frac{1}{\pi\lvert\mathcal{E}_o\rvert^2}\exp\left(-\frac{\lvert\mathcal{E}\rvert^2}{\lvert\mathcal{E}_o\rvert^2}\right)$
Densité spectrale	$\delta(\omega - \omega_o)$	$\left((\omega-\omega_o)^2 + \gamma_L^2/4\right)^{-1}$	$\delta(\omega - \omega_o)$	$\left((\omega-\omega_o)^2 + \gamma_L^2/4\right)^{-1}$
Largeur spectrale (L.T.M.H.)	0	γ_L	0	γ_L
$G^{(n,n)}(t,\, t+\tau)$	$\lvert\mathcal{E}_o\rvert^{2n}$	$\lvert\mathcal{E}_o\rvert^{2n}\exp(-n^2\,\gamma_L\,\tau/2)$	$n!\,\lvert\mathcal{E}_o\rvert^{2n}$	$n!\,\lvert\mathcal{E}_o\rvert^{2n}\exp(-n\,\gamma_L\,\tau/2)$
Interprétation	Laser monomode	Champ laser à éclairement stabilisé, élargi par fluctuations de phase	Laser multimode "en bande nulle"	Laser multimode à spectre lorentzien

expérimentaux, surtout hors résonance. Il est possible d'obtenir une forme de raie décroissant plus vite qu'une lorentzienne avec des modèles markoviens. Toutefois, la densité spectrale de puissance est alors donnée nécessairement par une fraction rationnelle en $(\omega - \omega_o)^2$ / 36 /, ce qui exclut la modélisation exacte d'une raie gaussienne. Cette modélisation plus fine utilise des processus de Markov multidimensionnels, dont l'amplitude $\mathcal{E}$ du champ n'est qu'une composante parmi d'autres / 50-51 /, et se paie d'une complexité mathématique plus grande.

Enfin, le modèle C.G.L. implique l'indépendance statistique des différentes composantes spectrales, ce que contredisent certaines expériences (Chapitre II). Néanmoins, on verra dans la suite de ce mémoire que, même si certains désaccords secondaires entre expérience et théorie semblent effectivement attribuables aux défauts que nous venons de mentionner, les différents modèles de champ évoqués ci-dessus suffisent à une bonne compréhension théorique d'ensemble du phénomène I.M.P.R. en champ laser multimode.

CHAPITRE II

CHOIX D'UNE TRANSITION ATOMIQUE

Nous nous proposons ici de rappeler brièvement un ensemble de résultats physiques, acquis avant le début de nos expériences, et de montrer comment ils nous ont guidé dans le choix d'une transition atomique particulière pour notre étude. Nous nous y référerons également plus loin, pour l'interprétation de nos propres résultats expérimentaux.

Les expériences sur lesquelles nous nous sommes principalement appuyés portaient sur :

- l'ionisation non résonnante à 11 photons des atomes de xénon à l'aide d'un laser à nombre de modes variable (Sanchez et Lecompte, 1973-1975 / 31-32 /) ;
- l'ionisation résonnante à 3 + 1 photons de l'atome de Césium, avec résonance sur le niveau 6F (Morellec, Normand et Petite, 1974-1978 / 52-53 /).

Ce qui suit n'a évidemment pas pour objet de donner une description complète de ces expériences, pour laquelle le lecteur intéressé est renvoyé aux publications citées en référence.

II.1 - L'IONISATION NON RÉSONNANTE À 11 PHOTONS DU XÉNON

On sait que d'après la théorie des perturbations, le taux d'ionisation non résonnante à N photons d'un atome est donné par :

$$R^{ION} = \frac{dP^{ION}}{dt} = \sigma_N \cdot G^{(N,N)}(\vec{r}, t ; \ldots ; \vec{r}, t) \qquad (1)$$

où σ_N est une constante caractéristique de l'atome.

Si l'on se place à même éclairement laser moyen, le quotient des taux d'ionisation obtenus en champs laser chaotique et cohérent est donné, d'après les résultats du Chapitre I, par :

$$\frac{R^{ION}\ (\text{chaotique})}{R^{ION}\ (\text{cohérent})} = N! \qquad (2)$$

Dans la littérature, on trouve le plus souvent la formule (1) exprimée sous la forme :

$$R^{ION} = \frac{dP^{ION}}{dt} = \Sigma_N\ g_N < \Phi >^N \qquad (3)$$

où Σ_N est la section efficace généralisée d'ionisation à l'ordre N, de dimension $cm^{2N}.sec^{N-1}$, Φ est le nombre de photons par unité de surface et de temps et g_n est le "facteur de cohérence".

Σ_N est donné par :

$$\Sigma_N = \frac{(2\ \pi\ \alpha)^N}{4\ \pi^2}\ m_e\ \frac{|\ \vec{K}\ |}{h}\ .\ \omega_o^{\ N}\ .\ \int\ |\ M_{gf}\ |^2\ d\sigma\ (\ \vec{K}\ ) \qquad (4)$$

L'intégration porte sur la direction d'éjection du photoélectron, dont $\overline{K}$ est le vecteur d'onde. L'élément de matrice effectif M_{gf} entre l'état initial $|g>$ et l'état final ionisé $|f>$ vaut :

$$M_{gf} = \sum_{a_1,\ldots\ a_{N-1}} \frac{< g|\ r_\lambda\ |a_1 > \ldots < a_p|\ r_\lambda\ |a_{p+1} > \ldots < a_{N-1}|\ r_\lambda\ |f >}{(\omega_{a_1} - \omega_g - \omega_o) \ldots (\omega_{a_{N-1}} - \omega_g - (N-1)\ \omega_o)}$$

où r_λ désigne la composante de $\vec{r}$ parallèle à la polarisation du laser, les sommations sur les séries d'états intermédiaires $|a_i>$ portant sur tous les états propres de l'atome.

La valeur de g_N est respectivement de 1 et N! pour des champs cohérent et chaotique :

$$g_N = \frac{< \Phi^N >}{< \Phi >^N} = \frac{G^{(N,N)}(\vec{r},\ t\ ;\ \ldots\ ;\ \vec{r},\ t)}{G^{(1)}(\vec{r},\ t\ ;\ \vec{r},\ t)^N} \qquad (5)$$

et on se sert de cette valeur comme mesure du degré de chaoticité d'une lumière laser quelconque. On s'attend évidemment à ce que g_N croisse continument de 1 à N! lorsque le nombre des modes longitudinaux du laser augmente, en partant du cas monomode.

L'expérience de Sanchez et Lecompte a bien permis de retrouver ces propriétés du phénomène d'ionisation multiphotonique. Cette expérience consistait à étudier l'ionisation non-résonnante à 11 photons du Xénon à 10^{-4} torrs ($\cong 3.10^{12}$ atomes/cm^3) à l'aide d'un laser à verre dopé au Néodyme, monomode transverse et à nombre de modes longitudinaux variable. Ce laser, à déclenchement actif, avait une durée d'impulsion de 25 nsec et donnait dans la zone de focalisation un éclairement de l'ordre de 10^{12} W/cm^2, nécessaire pour obtenir un signal d'ions suffisant / 54 /. En mesurant le nombre d'ions Xe^+ formes lors du tir laser en fonction de l'éclairement et du nombre des modes longitudinaux, on vérifiait bien (figure II.1) que ce nombre d'ions est proportionnel à la puissance 11 de l'éclairement, la constante de proportionnalité augmentant de plusieurs ordres de grandeur lorsque le nombre des modes longitudinaux passe de 1 à 100.

Si on fait l'hypothèse que les différents modes laser sont statistiquement indépendants, il est possible de calculer théoriquement g_N, à condition de se donner la fraction de l'éclairement total relative à chaque mode. Un tel calcul a été effectué par Debéthune / 28 / en 1972. On voit sur la figure II.2 les résultats de ce calcul pour un spectre laser "carré" (tous les modes d'égale intensité). Il se trouve que la croissance de g_N vers sa valeur asymptotique N! est d'autant plus lente que l'ordre de non-linéarité N est plus élevé. Ainsi, tel laser pourra être considéré comme chaotique pour une expérience à 4 photons, mais non pour une expérience à 10 photons.

Une comparaison quantitative entre théorie et expérience peut être effectuée en partant des courbes de la figure II.1. On voit alors (figure II.3) que les prévisions du calcul pour g_{11} sont significativement au-dessus des valeurs expérimentales / 33 /. La courbe expérimentale pour g_{11} coïncidait sensiblement avec la courbe théorique obtenue pour un nombre de modes 3 fois moindre. Ce résultat fut interprété par les auteurs en remarquant / 33 / que le spectre de leur laser multimode était formé d'une série de raies discrètes,

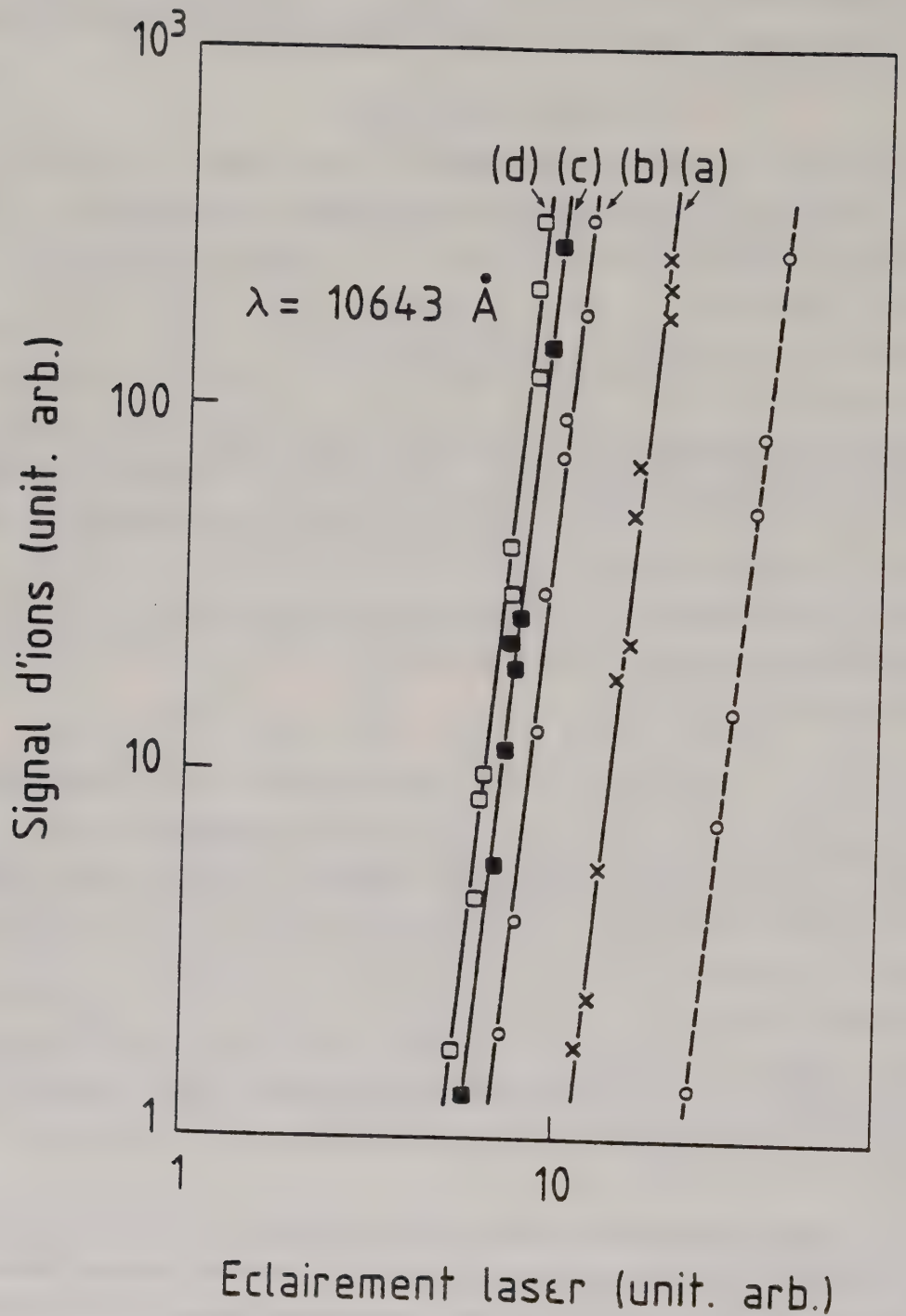


Figure II.1 - Signal d'ions Xe^+ en fonction de l'éclairement, pour différents nombres de modes : (a) 10 modes ; (b) 30 modes ; (c) 70 modes ; (d) 100 modes ; en pointillé : monomode (d'après / 32 /).

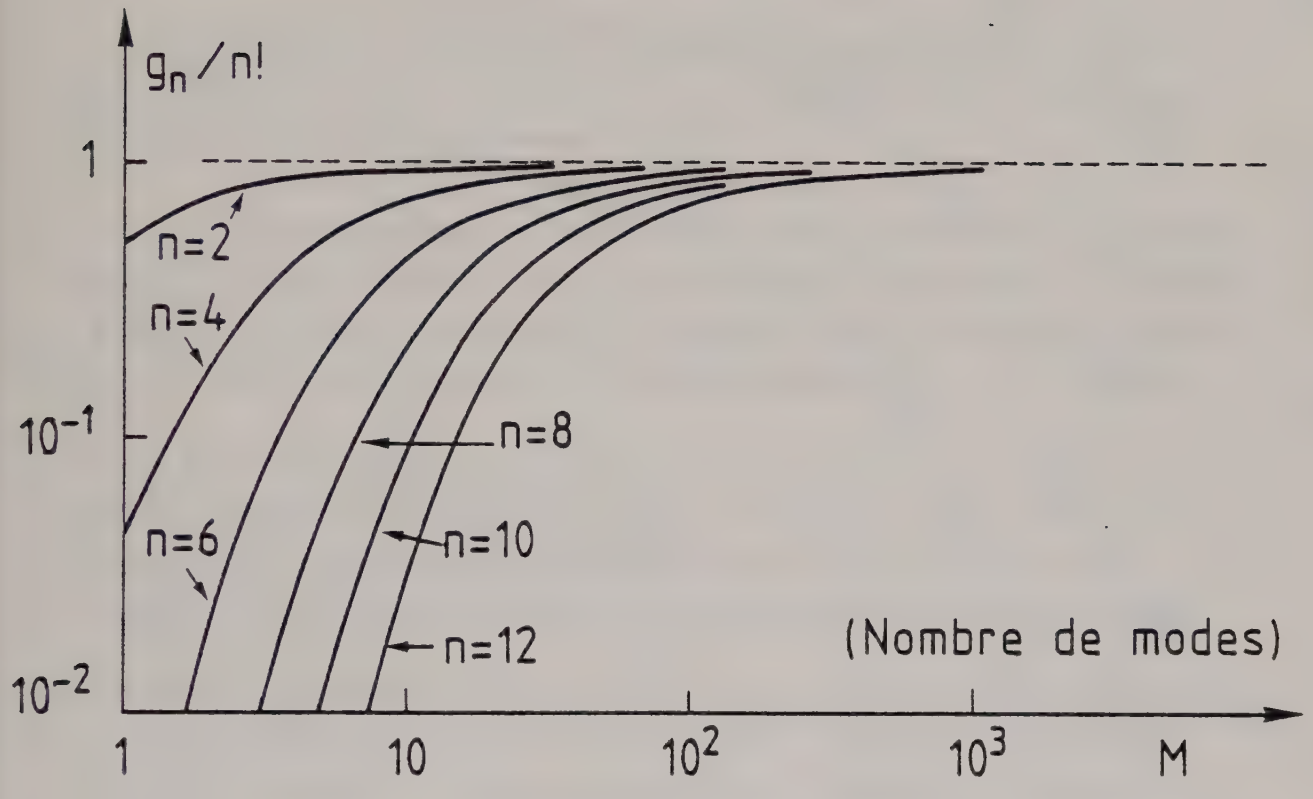


Figure II.2 - Facteur de cohérence normalisé en fonction du nombre de modes (d'après / 28 /) (modes égaux et indépendants).

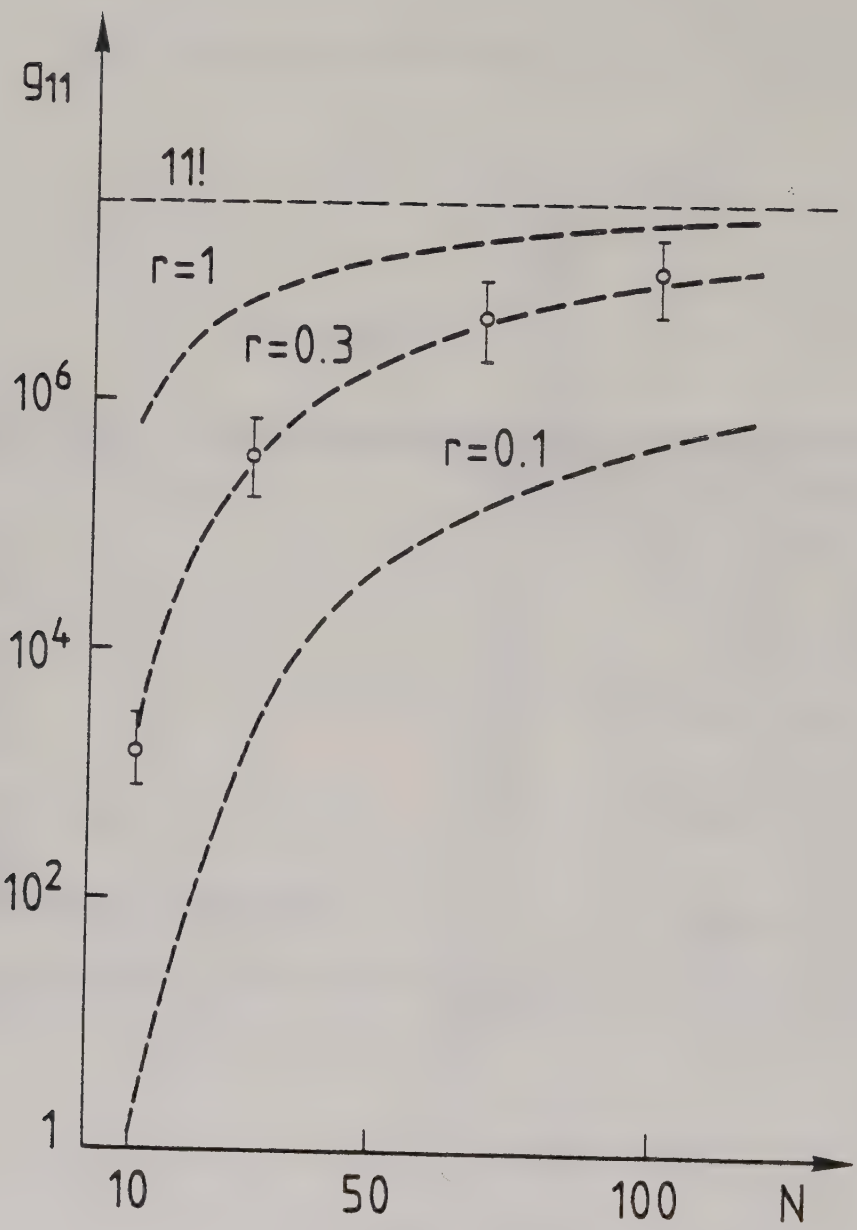


Figure II.3 - Valeurs expérimentales de g_{11} pour le laser à verre Néodyme de la référence / 32 / en fonction du nombre de modes N. En pointillé : courbes théoriques, d'après la référence / 28 /, pour un nombre r*N de modes décorrélés.

chaque raie contenant environ 10 modes. Il était alors raisonnable d'admettre que les modes composant une raie donnée étaient couplés entre eux de manière à réduire g_{11}.

II.2 - L'IONISATION MULTIPHOTONIQUE RÉSONNANTE DU CÉSIUM

On voit sur l'équation (4) que la formule perturbative diverge en cas de résonance, lorsque l'énergie d'un état lié de l'atome coïncide avec celle d'un nombre entier de photons lasers.

Il était évidemment très intéressant de pouvoir étudier expérimentalement une telle situation, et il est apparu que l'ionisation à 4 photons de l'atome de Césium, avec résonance à 3 photons sur le niveau 6F, remplissait deux conditions nécessaires à une bonne expérience :

- la vapeur de Césium est relativement facile à utiliser, la pression de vapeur saturante à la température ambiante étant de quelques 10^{10} particules par cm^3, trop faible pour donner lieu à des effets collectifs "parasites", mais assez forte pour donner un signal d'ions utilisable ;

- le niveau 6F du Césium se situe à 28.329 cm^{-1} au-dessus du fondamental, la résonance a lieu pour 3 photons de 9.443 cm^{-1} (figure 4). On peut donc explorer une gamme de quelques dizaines de cm^{-1} de part et d'autre de la résonance à l'aide du laser à verre dopé au Néodyme (phosphate ou silicate), dont les propriétés spectrales et temporelles sont relativement bien contrôlables par l'utilisateur.

L'expérience a été menée en 1975-1977 par Morellec, Normand et Petite, à l'aide d'un tel laser, accordable, monomode longitudinal et transverse (durée d'impulsion : 20 nsec) / 55 /. Pour des éclairements de quelques 10^7 W/cm^2, on constate une variation du signal d'ions de 3 à 4 ordres de grandeur lors du passage à la résonance, moyennant une plage de variation en longueur d'onde de quelques Angströms seulement.

La figure II.5 montre le signal d'ions obtenu en fonction de la longueur d'onde. Le spectre d'ionisation se compose de quatre résonances

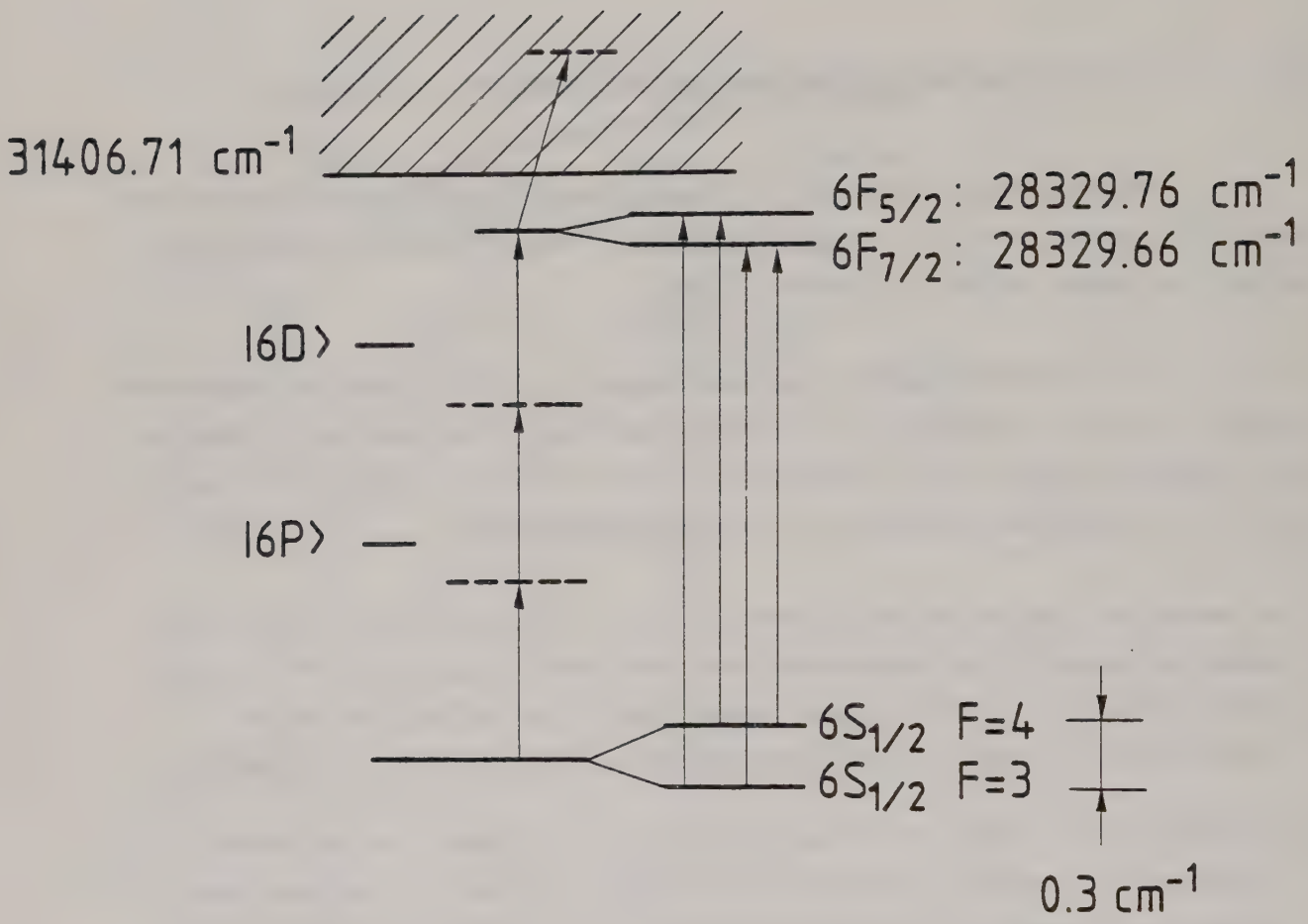


Figure II.4 - Schéma de l'ionisation à 4 photons de l'atome de Césium, avec résonance à 3 photons sur l'état 6F.

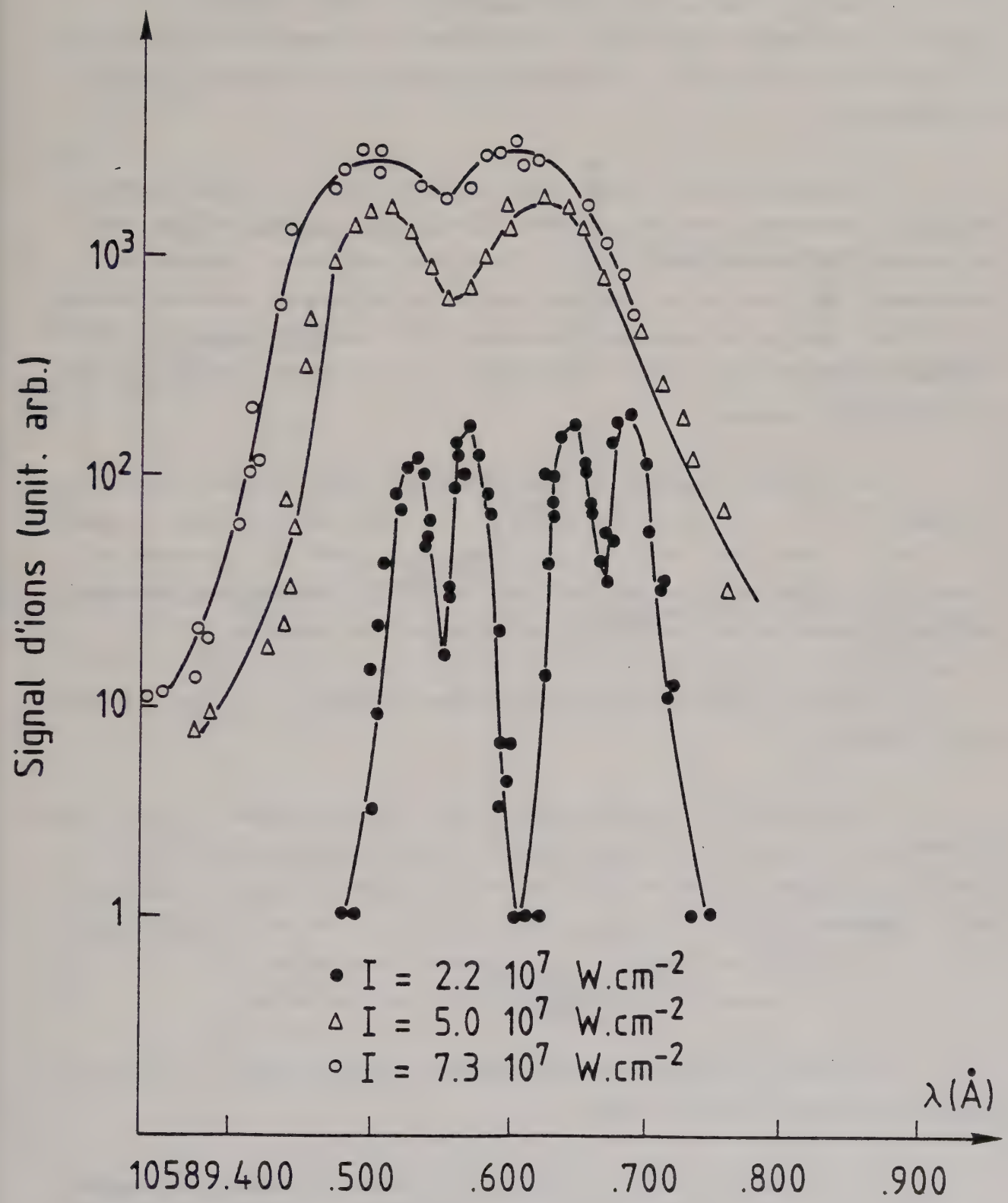


Figure II.5 - Signal d'ions en fonction de la longueur d'onde pour l'ionisation à 3 + 1 photons du Césium (réf. / 53 /).

individuelles, à cause de la structure hyperfine du fondamental (0,3 cm^{-1}) et de la structure fine du niveau résonnant 6F (0,1 cm^{-1}) (figure II.4). Pour des éclairements assez forts, la structure fine cesse d'être discernable, et il ne reste que deux pics correspondant chacun à un sous-niveau hyperfin du fondamental.

On constate sur la figure II.5 que lorsque l'éclairement augmente, les pics de résonance sont non seulement élargis mais de plus décalés vers les courtes longueurs d'onde. Il s'agit d'un décalage Stark, linéaire en éclairement, qui résulte des couplages dipolaires existants entre les niveaux 6S et 6F et d'autres niveaux, non résonnants, de l'atome de Césium. On peut facilement comprendre le sens du déplacement en utilisant le concept d'atome habillé / 56 /.

Le couplage dipolaire le plus fort étant celui existant entre le fondamental 6S et le niveau de résonance 6P, et l'énergie du niveau 6P valant 11.732 cm^{-1}, l'état $|$ 6P, (n-1) photons $>$ se situe 2.289 cm^{-1} au-dessus de l'état $|$ 6S, n photons $>$, et repousse donc ce dernier vers le bas, conformément aux formules de la théorie des perturbations stationnaires / 57 /.

La mesure de ce décalage a donné 2 $cm^{-1}/GW/cm^2$ / 53 /, en bon accord avec la théorie.

Mentionnons une caractéristique, utile ultérieurement, de ces courbes de résonance. La figure II.6 donne l'ordre effectif de non-linéarité (ou la "pente") K du signal d'ions en fonction de la longueur d'onde, au voisinage de la résonance :

$$K = \frac{\partial \text{ Log } (P^{ION})}{\partial \text{ Log } I} \qquad (6)$$

D'après la théorie des perturbations, K vaut 4 loin de la résonance, ce que l'expérience confirme bien.

Si l'on suppose qu'on traverse la résonance en augmentant progressivement la longueur d'onde, la pente K, partant de 4, croît progressivement jusqu'à une valeur de l'ordre de 30, puis retombe brusquement à 2 à la tra-

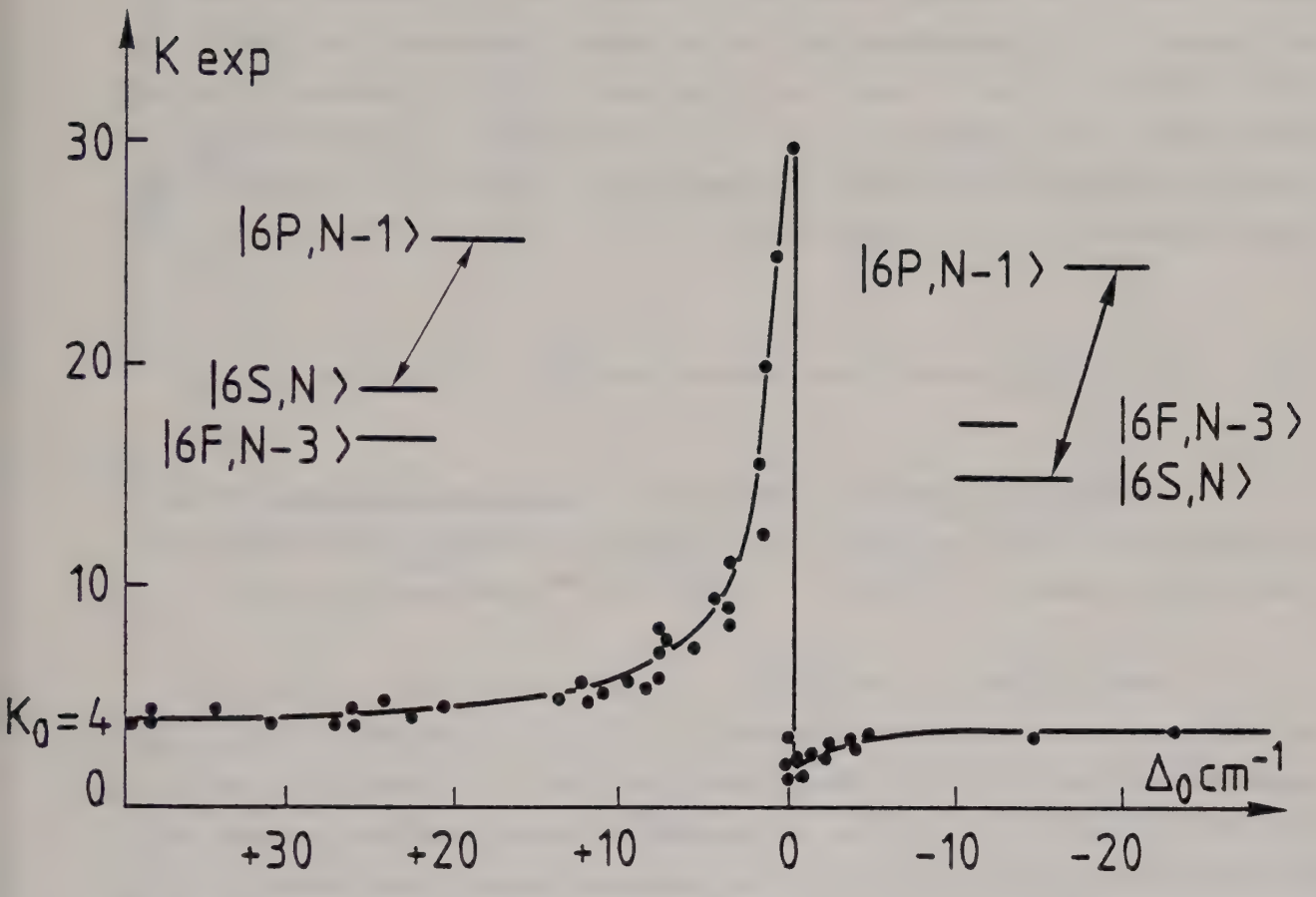


Figure II.6 - Ordre de non-linéarité expérimental $K = \frac{\partial \text{ Log } P^{ION}}{\partial \text{ Log } I}$ pour l'ionisation résonnante à 3 + 1 photons de l'atome de Césium, en fonction du désaccord à la résonance Δ_o (d'après / 52 /).

versée de la résonance, pour remonter ensuite lentement vers sa valeur asymptotique 4 (figure II.6). Ce comportement peut se comprendre qualitativement à partir du décalage Stark de la transition à 3 photons. En deçà de la résonance, un accroissement de l'éclairement, repoussant le niveau | 6S, n photons > vers le bas, tend à diminuer l'écart d'énergie entre les deux niveaux | 6S, n photons > et | 6F, (n-3) photons >, c'est-à-dire à pousser le système en résonance. Au contraire, au-delà de la résonance, il tend à accroître l'écart énergétique.

II.3 - Conclusions

La question première à laquelle il fallait répondre pour définir notre expérience était celle de l'ordre de non-linéarité du processus qui permettrait d'observer au mieux l' "interaction" cohérence-résonance.

Tout d'abord, l'expérience / 32, 58 / et la théorie / 25, 28 / montrent que, dans le cas non-résonnant, le rôle de la cohérence de la lumière augmente vite avec l'ordre de non-linéarité. Ainsi, la formule (2) montre que, pour une ionisation à 2 photons, le passage du laser monomode au laser multimode apportera au plus un facteur 2 au signal d'ions. L'utilisation d'un tel processus était donc à exclure, simplement parce que le rôle joué par la cohérence y est trop faible. Par contre, on a vu (figure II.1) que dans l'ionisation à 11 photons du Xénon, on peut obtenir une variation du signal d'ions de près de sept ordres de grandeur, à même éclairement moyen, par modification de la cohérence temporelle du laser. Ceci nous conduirait donc à étudier une ionisation à une dizaine de photons (cas des atomes de gaz rares).

Malheureusement, dans de telles expériences, il est nécessaire pour obtenir un signal d'ionisation utilisable de monter jusqu'à des éclairements très importants (10^{12} à 10^{15} W/cm^2). A de tels éclairements, l'expérience montre que l'amortissement d'une résonance par couplage avec le continuum d'ionisation est suffisamment fort pour qu'il soit impossible d'obtenir des courbes de résonance analogues à celle de la figure II.5. Ainsi, la figure II.7 montre ce qu'on obtient en balayant en longueur d'onde

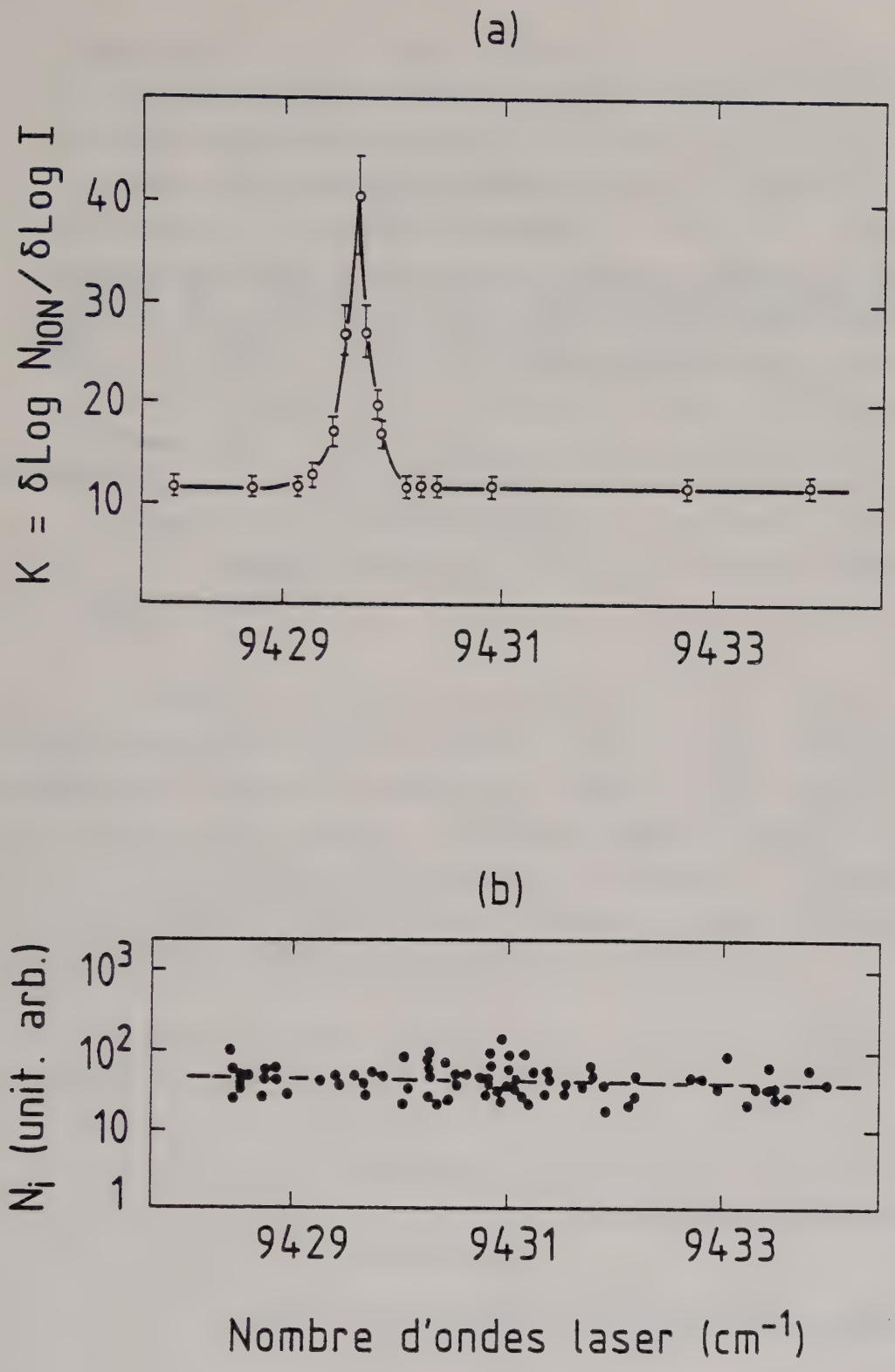


Figure II.7 - Ordre effectif de non-linéarité K et signal d'ions N_i en fonction de la fréquence laser, au voisinage d'une résonance du processus d'ionisation à 12 photons du Krypton ($I \cong 10^{13}$ W/cm^2) (d'après / 59 /).

une résonance de l'atome de Krypton vers 10^{13} W/cm^2 / 59 /. La résonance n'était détectée que grâce à la variation de l'ordre effectif de non-linéarité K. Par contre, des courbes de résonance montrant des variations du signal d'ions portant sur plusieurs ordres de grandeur sont obtenues avec l'ionisation à 2 + 1 ou à 3 + 1 photons du Césium / 53 /. Les effets de cohérence et de résonance sont donc, d'une certaine façon, antinomiques : la cohérence joue un grand rôle pour des ordres de non-linéarité élevés, la résonance pour des ordres de non-linéarité faibles. Il nous a donc semblé, pour ces raisons physiques assez fondamentales, que l'ionisation à 3 + 1 photons du Césium constituait, comme cas intermédiaire, un bon compromis pour l'observation d'effets conjoints résonance-cohérence. A ces arguments s'ajoute, bien sûr, l'existence des connaissances déjà acquises par une expérience analogue réalisée avec un laser uniquement monomode.

CHAPITRE III

THEORIE DE L'IONISATION MULTIPHOTONIQUE RESONNANTE DANS UN CHAMP OPTIQUE FLUCTUANT

III.1 - PRÉLIMINAIRE

Ce chapitre se propose de donner une description générale des formalismes susceptibles de décrire l'I.M.P.R. dans un champ électromagnétique laser multimode, sans idée de comparaison directe, pour l'instant, aux expériences décrites dans ce mémoire. On exposera essentiellement les équations dans le cas d'une ionisation à 3 photons avec résonance à 2 photons, l'extension à une résonance à 3 photons ne faisant appel à aucune idée supplémentaire et alourdissant donc inutilement l'exposé.

On considère donc un atome dont le diagramme d'énergie est donnée par la figure III.1.

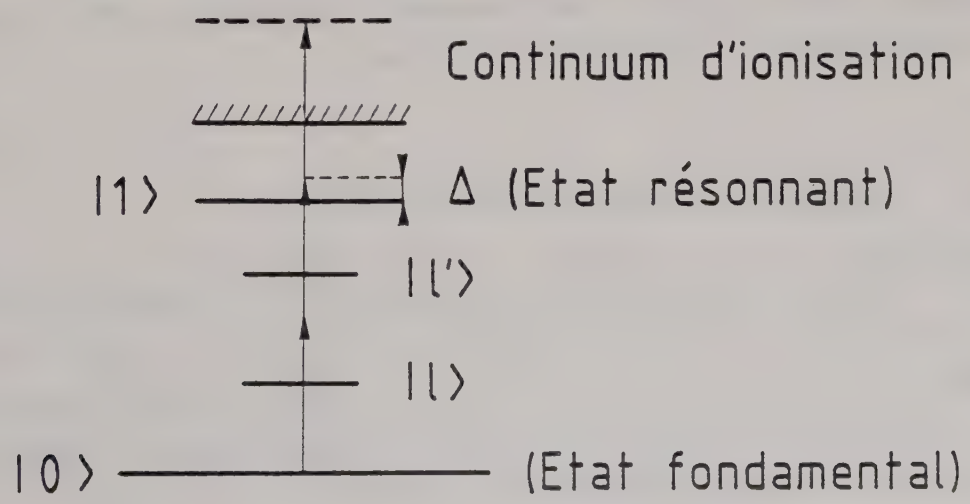


Figure III.1

Le formalisme le plus utilisé dans le traitement théorique de l'IMPR a été jusqu'ici la théorie de la résolvante, qui a été décrite en détail par différents auteurs / 56, 60, 61 /. Malheureusement, l'emploi de la résolvante implique de considérer un Hamiltonien d'interaction indépendant du temps, ce qui implique une description quantique (espace de Fock)du champ laser. Une telle exigence est notamment peu favorable à l'étude des effets de largeur de raie : considérons en effet une transition résonnante à 3 photons, interagissant avec un champ laser décrit par une vingtaine de modes quantiques ; nous devons chercher l'expression de la probabilité de présence de l'atome dans le niveau résonnant supérieur $|1>$. A cette fin, il nous faut additionner les probabilités pour que le système atome-champ soit dans chaque état du type $|1> \otimes |C>$, où $|C>$ est un état du champ donné par le produit tensoriel $|1 : n_1\text{-}p_1> \otimes |2 : n_2\text{-}p_2> \ .... \otimes |20 : n_{20}\text{-}p_{20}>$ ($|k : m>$ représentant l'état à m photons du $k^{ième}$ mode du champ, et n_K le nombre de photons présents dans le mode k au début de l'interaction, avec les conditions : $\sum_1^{20} p_i = 3$ et $0 \leqslant p_i \leqslant 3$). Pour le cas (expérimentalement raisonnable) de 20 modes, cela représente l'addition de $C_{22}^3 = 1.540$ termes, ainsi que le montre un calcul combinatoire facile.

Ceci permet de comprendre que la plupart des traitements théoriques publiés sur l'IMPR en champ laser fluctuant aient utilisé une description classique du champ laser, autrement dit un formalisme semi-classique. Il faut exclure toutefois les calculs relevant de l'approximation dite de bande nulle, dont mention est faite plus bas et pour lesquels on se borne à effectuer une moyenne statistique sur une probabilité d'ionisation calculée pour un laser cohérent, celle-ci pouvant indifféremment être calculée par le formalisme semi-classique ou à l'aide de la résolvante.

III.2 - CALCUL DE L'HAMILTONIEN EFFECTIF

Nous nous proposons ici de montrer que, de même que pour la théorie de la résolvante, la théorie semi-classique permet de traiter le problème de l'IMPR dans le cadre d'un système à deux niveaux, l'effet des autres niveaux étant décrit par des quantités adéquates placées dans un "Hamiltonien effectif" à deux niveaux (états fondamental et résonnant).

Le moyen employé pour ce faire consiste essentiellement en une séparation de l'évolution de l'état quantique $|\psi>$ de l'atome en un mouvement rapide et un mouvement lent ; seront considérés comme "rapides" :

- la fréquence optique ω du laser,
- les désaccords de fréquence entre les niveaux non-résonnants et l'énergie du photon laser, $\omega - \omega_1$.

A l'inverse, seront considérés comme "lents" :

- la désaccord de la transition résonnante à 2 photons, soit $\Delta = 2\omega - \omega_{10}$,
- les fréquences de Rabi associées aux éléments de matrice du dipole atomique, $\Omega_R = \mu E/\hbar$,
- la vitesse d'ionisation du niveau résonnant $|1>$ aux éclairements lasers considérés, soit Σ_1,
- la vitesse de variation de l'amplitude du champ laser, caractérisée par la largeur de raie γ_L.

Donnons dès à présent des ordres de grandeur de ces quantités, tels qu'ils apparaissent dans nos expériences :

a) - $\omega/2\pi \cong 3.10^{14}$ Hz

- $(\omega - \omega_1)/2\pi \gtrsim 5.10^{13}$ Hz

b) - $\Delta < 10^{11}$ Hz

- $\mu_{o1} E/h \sim 3.10^{11}$ Hz
- $\Sigma_1 \sim 10^8$ Hz
- $\gamma_L \sim 3.10^9$ Hz

L'espace des états est donc celui de l'atome seul, et l'hamiltonien d'interaction vaut :

$$V = - \hat{\mu} \cdot \vec{E}(t) \qquad (1)$$

avec $$\vec{E}(t) = \vec{\mathcal{E}}(t)\, e^{i\omega t} + \vec{\mathcal{E}}^*(t)\, e^{-i\omega t} \qquad \text{et } 2\omega \cong \omega_{10} \qquad (2)$$

$\hat{\mu}$ étant l'opérateur moment dipolaire électrique de l'atome. On fera à partir de maintenant l'approximation scalaire :

$$V = - \mu \, . \, E(t) \tag{3}$$

ce qui est toujours possible avec une polarisation linéaire du laser.

Comme il sera plus tard nécessaire d'effectuer des moyennes sur l'ensemble des histoires possibles du processus aléatoire $\epsilon(t)$, il est logique d'introduire, au lieu de l'équation de Schrödinger, le formalisme de la matrice densité. L'équation d'évolution est alors :

$$i \frac{d\rho}{dt} = H_o \rho + V\rho - \rho H_o^* - \rho V \tag{4}$$

où H_o^*, l'adjoint de l'hamiltonien de l'atome libre apparaît du fait qu'on emploie un hamiltonien non hermitien pour rendre compte de l'instabilité des états excités de l'atome, due à l'existence de l'émission spontanée, ceci essentiellement par commodité mathématique.

On s'intéresse essentiellement, dans le calcul, à la probabilité d'ionisation, soit :

$$P^{ION}(t) = 1 - \rho_{00}(t) - \rho_{11}(t) \tag{5}$$

puisque l'on peut négliger la population des états non résonnants.

Il faut alors examiner les équations d'évolution pour y étudier le rôle des différentes fréquences rapides. Il est préférable de mener à bien cette tâche sur l'équation de Schrödinger en représentation d'interaction, la signification physique des différents termes étant alors plus apparente que dans le formalisme de la matrice-densité. Il vient :

$$|\psi(t)\rangle = b_o(t) \, |0\rangle + b_1(t) \, . \, \exp(- i\omega_1 t) \, |1\rangle + \sum_1 b_1(t) \exp(- i\omega_1 t) \, |1\rangle$$

$$
\begin{aligned}
&(a)\quad i\,\dot{b}_o = -\sum_1 \mu_{o1}\,(\quad \exp(i\omega t) + c.c.)\,\exp(-\,i\omega_1 t)\,b_1 \\
&(b)\quad i\,\dot{b}_1 = -\,\mu_{1o}\,(\ \exp(i\,\omega\,t) + c.c.)\,\exp(i\,\omega_1\,t)\,b_o + \\
&\qquad\qquad -\,\mu_{11}\,(\ \exp(i\,\omega\,t) + c.c.)\,\exp(i\,\mu_{11}\,t)\,b_1 \\
&(c)\quad i\,\dot{b}_1 = -\sum_1 \mu_{11}\,(\ \exp(i\,\omega\,t) + c.c.)\,\exp(i\,\omega_{11}\,t)\,b_1
\end{aligned}
\qquad (6)
$$

La solution de ces équations pour un champ laser nul donnant :

$$b_o = \text{constante}$$

on en déduit que $b_o(t)$ comporte, en général, un terme variant lentement et donc, d'après (6.b), que $b_1(t)$ comporte des termes oscillants rapidement avec des pulsations $\omega_1 \mp \omega$. En itérant ce raisonnement, on trouve de proche en proche les différentes fréquences rapides des coefficients b_i. Il convient, au cours de ce processus, d'associer à chaque fréquence les diagrammes de Feynmann permettant de les obtenir, et d'éliminer au fur et à mesure les fréquences correspondant à des diagrammes antirésonnants ou d'ordres supérieurs. La faiblesse du couplage effectif $|0> \leftrightarrow |1>$ tel qu'il apparaîtra dans le calcul, permet de justifier à posteriori cette approximation. On néglige, de même, le phénomène d'ionisation à 3 photons non résonnante, autrement dit, on néglige l'existence de niveaux excités de même parité que $|0>$ et $|1>$.

Il apparaît, en fin de calcul, que les seules fréquences intéressantes sont :

- pour b_o et b_1 : des fréquences lentes,
- pour $b_1(t)$: $\omega_1 + \omega$, $\omega_1 - \omega$, $\omega_1 - 3\,\omega$.

La figure III.2 donne la liste des diagrammes de Feynman retenus, ainsi que les fréquences auxquelles ils donnent naissance.

Nous avons gardé le seul diagramme (d) parmi les diagrammes antirésonnants, car il donne une contribution (faible) au décalage Stark du niveau $|0>$, par le diagramme (a).

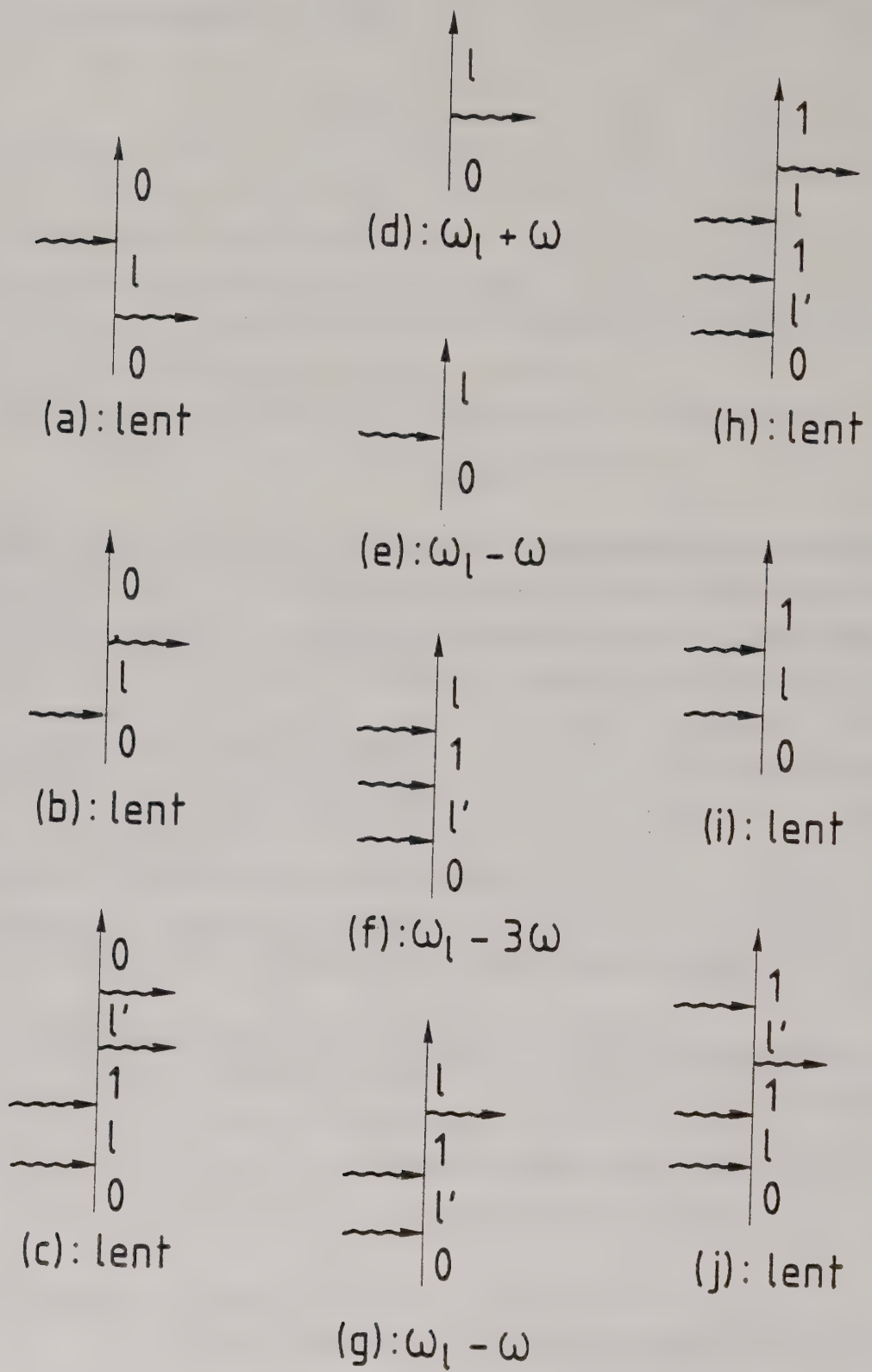


Figure III.2 - Diagrammes retenus dans l'Hamiltonien effectif, avec les fréquences engendrées.

L'ensemble des diagrammes de la figure III.2 permet de faire apparaître dans le calcul le décalage Stark des niveaux $|0\rangle$ et $|1\rangle$, le couplage effectif du deuxième ordre entre ces deux niveaux, et la saturation de la transition $|1\rangle \leftrightarrow$ Continuum. Ainsi, par exemple, le diagramme (h) décrit simultanément :

- le décalage Stark du niveau $|1\rangle$
- la saturation de la transition $|1\rangle \leftrightarrow$ Continuum (si 1 est un état ionisé).

La figure III.3 montre quelques exemples de diagrammes que nous négligeons. Par exemple, le diagramme central symbolise le passage de $|0\rangle$ à $|1\rangle$ par émission de deux photons (!).

Pour revenir alors au langage de la matrice densité, il suffit d'utiliser la formule :

$$\rho_{ij} = b_i \, b_j^{*} . e^{i \omega_{ji} t} \tag{7}$$

et on voit qu'on peut alors réécrire les différents éléments de matrice de ρ de la manière suivante / 62 / :

$$\text{(a)} \quad \rho_{o1}(t) = \sigma_{o1}^{(-1)} \, e^{-i\omega t} + \sigma_{o1}^{(1)}(t) \, e^{i\omega t} + \sigma_{o1}^{(3)}(t) \, e^{3i\omega t}$$

$$\text{(b)} \quad \rho_{11}(t) = \sigma_{11}^{(-3)}(t) \, e^{-3i\omega t} + \sigma_{11}^{(-1)}(t) \, e^{-i\omega t} + \sigma_{11}^{(1)}(t) \, e^{i\omega t} \tag{8}$$

$$\text{(c)} \quad \rho_{01}(t) = \sigma_{01}^{(2)}(t) \, e^{2i\omega t}$$

$$\text{(d)} \quad \rho_{00}(t) = \sigma_{00}^{(0)}(t)$$

$$\text{(e)} \quad \rho_{11}(t) = \sigma_{11}^{(0)}(t)$$

où les quantités $\sigma_{ij}^{(K)}(t)$ sont lentement variables.

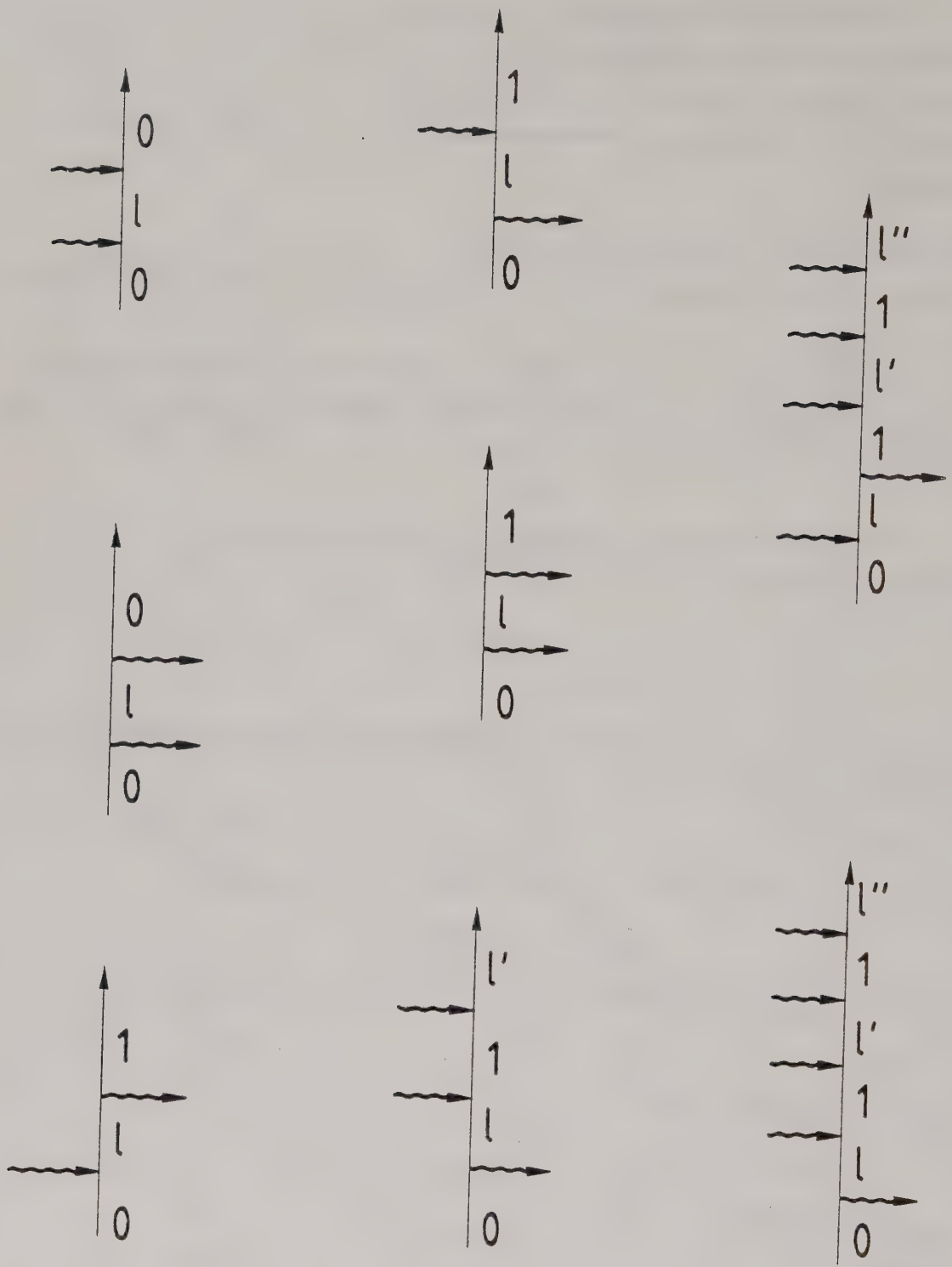


Figure III.3 - Diagrammes exclus de l'Hamiltonien effectif.

On a de plus, en identifiant les développements en harmoniques du laser de ρ_{ij} et ρ_{ji}^{*}, la formule :

$$\sigma_{ij}^{(n)} = \sigma_{ji}^{(-n)\ *} \tag{9}$$

On peut alors développer l'équation d'évolution de la matrice-densité :

$$\text{(a)}\quad i\,\dot{\rho}_{00} = \sum_{1} (-\mu_{o1}\,E(t)\,\rho_{1o} + \mu_{1o}\,E(t)\,\rho_{o1})$$

$$\text{(b)}\quad i\,\dot{\rho}_{11} = -\,i\,\gamma_1\,\rho_{11} + \sum_{1} (-\mu_{11}\,E(t)\,\rho_{11} + \mu_{11}\,E(t)\,\rho_{11})$$

$$\text{(c)}\quad i\,\dot{\rho}_{01} = -\,\rho_{01}\,(\omega_1 + i\,\gamma_1/2) + \sum_{1} (-\mu_{o1}\,E(t)\,\rho_{11} + \mu_{11}\,E(t)\,\rho_{o1}) \tag{10}$$

$$\text{(d)}\quad i\,\dot{\rho}_{o1} = -\,\rho_{o1}\,(\omega_1 + i\,\gamma_1/2) + \mu_{o1}\,E(t)\,\rho_{00} + \mu_{11}\,E(t)\,\rho_{01}$$

$$\text{(e)}\quad i\,\dot{\rho}_{11} = ((\omega_1 - \omega_1) - i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2)\,\rho_{11} + \mu_{o1}\,E(t)\,\rho_{10} + \mu_{11}\,E(t)\,\rho_{11}$$

Dans ces dernières équations, on a négligé les termes proportionnels à la population des niveaux non-résonnants. Par ailleurs, γ_1 et γ_1 désignent les vitesses de désintégration des états excités par émission spontanée.

Il reste alors à identifier dans chaque équation les termes de même fréquence ; on reporte donc (8) dans (10) ; il vient notamment :

$$\text{(a)}\quad i\,(\dot{\sigma}_{11}^{(1)} + i\omega\,\sigma_{11}^{(1)}) = ((\omega_1 - \omega_1) - i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2)\,\sigma_{11}^{(1)} + \mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{11}^{(0)}$$

$$\text{(b)}\quad i(\dot{\sigma}_{11}^{(-1)} - i\omega\,\sigma_{11}^{(-1)}) = ((\omega_1 - \omega_1) - i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2)\,\sigma_{11}^{(-1)} + \mu_{o1}\,\epsilon\,\sigma_{10}^{(-2)} + \mu_{11}\,\epsilon^{*}\,\sigma_{11}^{(0)}$$

$$\text{(c)}\quad i\,(\dot{\sigma}_{11}^{(-3)} - 3\,i\omega\,\sigma_{11}^{(-3)}) = ((\omega_1 - \omega_1) - i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2)\,\sigma_{11}^{(-3)} + \mu_{o1}\,\epsilon^{*}\,\sigma_{10}^{(-2} \tag{11}$$

Nous cherchons en définitive à obtenir un système d'équations où ρ_{o1} et ρ_{11} seraient absents ("système à 2 niveaux effectif"). On remarque alors que, puisque les quantités $\sigma_{11}^{(K)}$ sont, par construction, lentement variables, on peut négliger dans les équations (11) $\dot{\sigma}_{11}^{(K)}$ devant $\omega\, \sigma_{11}^{(K)}$; on tire alors de (11) des expressions de $\sigma_{11}^{(K)}$ en fonction de σ_{00}, σ_{11}, $\sigma_{01}^{(2)}$. Il vient :

$$(a)\quad \sigma_{11}^{(1)} = \frac{\mu_{11}\, \epsilon\, \sigma_{11}^{(0)}}{(\omega_1 - \omega_1 - \omega) + i\,(\gamma_1 + \gamma_\ell)/2}$$

$$(b)\quad \sigma_{11}^{(-1)} = \frac{\mu_{o1}\, \epsilon\, \sigma_{10}^{(-2)} + \mu_{11}\, \epsilon^*\, \sigma_{11}^{(0)}}{(\omega_1 - \omega_1 + \omega) + i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2} \qquad (12)$$

$$(c)\quad \sigma_{11}^{(-3)} = \frac{\mu_{o1}\, \epsilon^*\, \sigma_{10}^{(-2)}}{(\omega_1 - \omega_1 + 3\,\omega) + i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2}$$

REMARQUE :

La justification de l'équation (12.a) peut sembler en défaut lorsque l'état $|1\rangle$ considéré est l'état du continuum d'énergie 3ω, où l'atome aboutit lorsqu'il s'ionise. Le dénominateur dans (12.a) est alors très petit. On peut néanmoins justifier rigoureusement l'emploi de (12.a) (cf. Appendice B) sachant que dans la suite du calcul, on n'emploiera cette expression que pour évaluer des sommations du type :

$$S(t) = \sum_1 \sigma_{11}^{(1)}\, \phi\,(1) \qquad (13)$$

où Σ désigne en fait une intégration et où ϕ est une fonction lente de ω_1, qui ne change sensiblement que pour des variations de ω_1 de l'ordre de 10^{13} Hz.

On obtient de même, pour ρ_{o1} :

$$(a) \quad \sigma_{o1}^{(1)} = \frac{\mu_{o1}\, \epsilon\, \sigma_{00}^{(0)} + \mu_{11}\, \epsilon^*\, \sigma_{01}^{(2)}}{\omega_1 - \omega + i\, \gamma_1/2}$$

$$(b) \quad \sigma_{o1}^{(-1)} = \frac{\mu_{o1}\, \epsilon^*\, \sigma_{00}^{(0)}}{\omega_1 + \omega + i\, \gamma_1/2} \qquad (14)$$

$$(c) \quad \sigma_{o1}^{(+3)} = \frac{\mu_{11}\, \epsilon\, \sigma_{01}^{(2)}}{\omega_1 - 3\omega + i\, \gamma_1/2}$$

On peut alors reporter les résultats de (12) et (14) dans les équations analogues relatives à ρ_{00}, ρ_{11} et ρ_{01}. Il vient :

$$i\,(\dot{\sigma}_{o1}^{(2)} + 2\, i\omega\, \sigma_{01}^{(2)}) = -\,\sigma_{01}^{(2)}\,(\omega_1 + i\,\gamma_1/2) + \sum_1 (-\mu_{o1}\,\epsilon\,\sigma_{11}^{(1)} - \mu_{o1}\,\epsilon^*\,\sigma_{11}^{(3)})$$

$$+ \sum_1 (\mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{o1}^{(1)} + \mu_{11}\,\epsilon^*\,\sigma_{o1}^{(3)}) \qquad (15)$$

D'où :

$$\dot{\sigma}_{01}^{(2)} + i\,(2\omega - \omega_{01})\,\sigma_{01}^{(2)} + \gamma_1/2\,\sigma_{01}^{(2)} =$$

$$i \sum_1 \mu_{o1} \left[\frac{\epsilon\,\mu_{1o}\,\epsilon^*\,\sigma_{01}^{(2)} + \epsilon\,\mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{11}^{(0)}}{(\omega_1 - \omega_1 + \omega) - i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2} + \frac{\epsilon^*\,\mu_{1o}\,\epsilon\,\sigma_{01}^{(2)}}{\omega_1 - \omega_1 + 3\omega - i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2} \right.$$

$$\left. - i \sum_1 \mu_{11} \left[\frac{\epsilon\,\mu_{o1}\,\epsilon\,\sigma_{00}^{(0)} + \epsilon\,\mu_{11}\,\epsilon^*\,\sigma_{01}^{(2)}}{\omega_1 - \omega + i\,\gamma_1/2} + \frac{\epsilon^*\,\mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{01}^{(2)}}{\omega_1 - 3\omega + i\,\gamma_1/2} \right] \right. \qquad (16)$$

On peut simplifier cette équation en négligeant les termes d'émission spontanée dans les dénominateurs non résonnants, ainsi qu'en y posant $\omega_{10} = 2\omega$, ce qui revient à négliger la variation lente des éléments de matrice

effectifs sur la largeur d'exploration de la résonance (équivalent de l'approximation séculaire dans la théorie de la résolvante). On a alors :

$$\dot{\sigma}_{01}^{(2)} + i\,(2\omega - \omega_1 - i\,\gamma_1/2)\,\sigma_{01}^{(2)} = -\,i\,\epsilon^2 \left[\sum_1 \frac{-\,\mu_{o1}\,\mu_{11}}{\omega_1 - \omega} \cdot \sigma_{11}^{(0)} + \sum_1 \frac{-\,\mu_{o1}\,\mu_{11}}{\omega_1 - \omega}\,\sigma_{00}^{(0)} \right] - i\,|\epsilon|^2\,\sigma_{01}^{(2)} \cdot \left[\sum_1 \left(\frac{-\,|\mu_{o1}|^2}{\omega_1 - \omega} + \frac{-\,|\mu_{o1}|^2}{\omega_1 + \omega} \right) + \sum_1 \left(\frac{|\mu_{11}|^2}{\omega_1 - \omega} + \frac{|\mu_{11}|^2}{\omega_1 - 3\omega + i\,\gamma_1/2} \right) \right] \qquad (17)$$

Examinons le dénominateur résonnant du dernier terme de (17). Les états résonnants se trouvent dans le continuum :

$$\sum_1 \frac{|\mu_{11}|^2}{\omega_1 - 3\omega + i\,\gamma_1/2} = \sum_{1'} \frac{|\mu_{11'}|^2}{\omega_{1'} - 3\omega} + \int \frac{\rho\,(\omega_1)\,|\mu_{11}|^2\,d\omega_1}{\omega_1 - 3\omega + i\,\gamma_1/2} \qquad (18)$$

Ici, $|1'\rangle$ se réfère au spectre direct, et $\rho(\omega_1)$ désigne la densité d'états du continuum d'ionisation. On assimile la largeur γ_L à une quantité infinitésimale, et on utilise la formule :

$$\frac{1}{x + i\,0^+} = \frac{P}{x} - i\,\pi\,\delta\,(x)$$

où P désigne la partie principale au sens de Cauchy. On a alors :

$$\int \frac{\rho\,(\omega_1)\,|\mu_{11}|^2\,d\omega_1}{\omega_1 - 3\omega + i\,0^+} = P \int \frac{\rho\,(\omega_1)\,|\mu_{11}|^2\,d\omega_1}{\omega_1 - 3\omega} - i\,\pi\,\rho\,(3\omega)\,|\mu_{1r}|^2$$

On voit que le dernier terme représente la section efficace d'ionisation du niveau $|1\rangle$, qui s'introduit donc naturellement dans le calcul ; $|r\rangle$ désigne l'état $|1\rangle$ d'énergie 3ω. On peut alors poser :

$$(a) \quad \sum_1 \left[\frac{|\mu_{11}|^2}{\omega_1 - \omega} + \frac{|\mu_{11}|^2}{\omega_1 - 3\omega + i\,\gamma_1/2} \right] = -\alpha_1 - i\,\gamma/2$$

$$(b) \quad \sum_1 \left[\frac{-|\mu_{o1}|^2}{\omega_1 - \omega} + \frac{-|\mu_{o1}|^2}{\omega_1 + \omega} \right] = \alpha_o \qquad (19)$$

$$(c) \quad \sum_1 \frac{\mu_{o1}\,\mu_{11}}{\omega_1 - \omega} = r_{01}$$

On voit que $\alpha_o\,|\epsilon|^2$, $\alpha_1\,|\epsilon|^2$ et $\gamma\,|\epsilon|^2$ sont respectivement le déplacement Stark dynamique des niveaux 0 et 1 et la largeur d'ionisation du niveau 1. Par ailleurs, $r_{01}\,\epsilon^2$ représente le couplage effectif entre les niveaux 0 et 1. On peut alors réécrire l'équation (17) sous la forme :

$$\dot{\sigma}_{01}^{(2)} + \{\, i\,(2\omega - \omega_1 - \alpha\,|\epsilon|^2) + \tfrac{1}{2}\,(\gamma_1 + \gamma\,|\epsilon|^2)\,\}\,\sigma_{01}^{(2)} =$$

$$= i\,\epsilon^2\,r_{01}\,(\sigma_{11}^{(0)} - \sigma_{00}^{(0)}) \qquad (20)$$

où on a posé :

$$\alpha = \alpha_1 - \alpha_0 \qquad (21)$$

$\alpha\,|\epsilon|^2$ représentant le décalage Stark total de la transition $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$.

On peut maintenant chercher à obtenir une équation correspondante pour $\sigma_{11}^{(0)}$, à partir de (10.b) et (12) :

$$i\,(\dot{\sigma}_{11}^{(0)} + \gamma_1\,\sigma_{11}^{(0)}) = \sum_1 (-\mu_{11}\,\epsilon^*\,\sigma_{11}^{(1)} - \mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{11}^{(-1)} + \mu_{11}\,\epsilon^*\,\sigma_{11}^{(1)} + \mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{11}^{(-1)})$$

$$= \sum_1 - \mu_{11}\,\epsilon^*\,\frac{\mu_{1o}\,\epsilon^*\,\sigma_{01}^{(2)} + \mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{11}^{(0)}}{\omega_1 - \omega} - \mu_{11}\,\epsilon\,\frac{\mu_{11}\,\epsilon^*\,\sigma_{11}^{(0)}}{\omega_1 - 3\omega - i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2}$$

$$+ \mu_{11}\,\epsilon^*\,\frac{\mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{11}^{(0)}}{\omega_1 - 3\omega + i\,(\gamma_1 + \gamma_1)/2} + \mu_{11}\,\epsilon\,\frac{\mu_{o1}\,\epsilon\,\sigma_{10}^{(-2)} + \mu_{11}\,\epsilon^*\,\sigma_{11}^{(0)}}{\omega_1 - \omega} =$$

$$= -\epsilon^{*2}\,r_{01}^*\,\sigma_{01}^{(2)} + \epsilon^2\,r_{01}\,\sigma_{01}^{(2)\,*} - i\,\gamma\,|\epsilon|^2\,\sigma_{11}^{(0)}$$

Au total :

$$\dot{\sigma}_{11}^{(0)} + (\gamma_1 + \gamma\,|\epsilon|^2)\,\sigma_{11}^{(0)} = -\,2\,\mathrm{Im}\,(\epsilon^{*2}\,r_{01}^{\,*}\,\sigma_{01}^{(2)}) \qquad (22)$$

On fait de même pour $\sigma_{00}^{(0)}$, à partir de (10.a) et (14) :

$$i\,\dot{\sigma}_{00}^{(0)} = \sum_1 (-\mu_{o1}\,\epsilon^*\,\sigma_{1o}^{(1)} - \mu_{o1}\,\epsilon\,\sigma_{1o}^{(-1)} + \mu_{1o}\,\epsilon^*\,\sigma_{o1}^{(1)} + \mu_{1o}\,\epsilon\,\sigma_{o1}^{(-1)}) =$$

$$= \sum_1 \left[-\mu_{o1}\,\epsilon\,\frac{\mu_{1o}\,\epsilon^*\,\sigma_{00}^{(0)} + \mu_{11}\,\epsilon\,\sigma_{10}^{(-2)}}{\omega_1 - \omega} - \mu_{o1}\,\epsilon^*\,\frac{\mu_{1o}\,\epsilon\,\sigma_{00}^{(0)}}{\omega_1 + \omega} + \right.$$

$$\left. + \mu_{1o}\,\epsilon^*\,\frac{\mu_{o1}\,\epsilon\,\sigma_{00}^{(0)} + \mu_{11}\,\epsilon^*\,\sigma_{01}^{(2)}}{\omega_1 - \omega} + \mu_{1o}\,\epsilon\,\frac{\mu_{o1}\,\epsilon^*\,\sigma_{00}^{(0)}}{\omega_1 + \omega} \right]$$

D'où :

$$\dot{\sigma}_{00}^{(0)} = 2\,\mathrm{Im}\,(\epsilon^{*2}\,r_{01}^{\,*}\,\sigma_{01}^{(2)}) \qquad (23)$$

auquel il faudrait ajouter le terme provenant des pertes de $|1\rangle$ par émission spontanée. On en tire, par combinaison avec (22), une équation donnant l'évolution de la population liée totale :

$$\frac{d}{dt}\,(\sigma_{00}^{(0)} + \sigma_{11}^{(0)}) = -\,\gamma\,|\epsilon|^2\,\sigma_{11}^{(0)} \qquad (24)$$

On voit alors que, moyennant les approximations faites, la dynamique du système peut être décrite entièrement par un système différentiel linéaire portant sur les quatre quantités $\sigma_{11}^{(0)}$, $\sigma_{01}^{(2)}$, $\sigma_{10}^{(-2)}$ et $\sigma_{00}^{(0)}$. On peut en effet écrire (abandonnant les indices d'harmoniques) / 62-65 / :

$$i\,\frac{d}{dt}\begin{vmatrix}\sigma_{01}\\ \sigma_{10}\\ \sigma_{11}\\ \sigma_{00}\end{vmatrix} = M\,.\begin{vmatrix}\sigma_{01}\\ \sigma_{10}\\ \sigma_{11}\\ \sigma_{00}\end{vmatrix} \qquad \text{avec M valant :} \qquad (25)$$

$$\begin{pmatrix} \Delta-\alpha|\epsilon|^2-i/2(\gamma_1+\gamma|\epsilon|^2) & 0 & -\epsilon^2 r_{01} & \epsilon^2 r_{01} \\ 0 & -(\Delta-\alpha|\epsilon|^2)-i/2(\gamma_1+\gamma|\epsilon|^2) & \epsilon^{2*} r_{01}^* & -\epsilon^{2*} r_{01}^* \\ -\epsilon^{*2} r_{01} & \epsilon^2 r_{01} & -i(\gamma_1+\gamma|\epsilon|^2) & 0 \\ \epsilon^{*2} r_{01} & -\epsilon^2 r_{01} & i\gamma_1 & 0 \end{pmatrix}$$

On obtient donc une équation d'évolution effective à deux niveaux, contenant un déplacement Stark, une fréquence de Rabi et une largeur d'ionisation instantanés. L'équation (25) se généralise au cas d'une ionisation résonnante à n = m + p photons. On obtient :

$$M = \tag{26}$$

$$\begin{pmatrix} \Delta-\alpha|\epsilon|^2-i/2(\gamma_1+\gamma|\epsilon|^{2p}) & 0 & -\epsilon^m r_{01} & \epsilon^m r_{01} \\ 0 & -(\Delta-\alpha|\epsilon|^2)-i/2(\gamma_1+\gamma|\epsilon|^{2p}) & \epsilon^{*m} r_{01}^* & -\epsilon^{*m} r_{01}^* \\ -\epsilon^{*m} r_{01}^* & \epsilon^m r_{01} & -i(\gamma_1+\gamma|\epsilon|^{2p}) & 0 \\ \epsilon^{*m} r_{01}^* & -\epsilon^m r_{01} & i\gamma_1 & 0 \end{pmatrix}$$

avec :

$$r_{01} = \sum_{l_1,\ldots,l_{m-1}} \frac{\mu_{0l_1}\,\mu_{l_1l_2}\,\cdots\,\mu_{l_{m-1},1}}{(\omega_{l_1}-\omega)\,(\omega_{l_2}-2\omega)\,\ldots\,(\omega_{l_{m-1}}-(m-1)\,\omega)} \tag{27}$$

$$\gamma = 2\pi \left| \sum_{l_1,\ldots,l_{p-1}} \frac{\mu_{1l_1}\,\mu_{l_1l_2}\,\cdots\,\mu_{l_{p-1}1}}{(\omega_{l_1}-\omega)\,\ldots\,(\omega_{l_{p-1}}-(p-1)\,\omega)} \right|^2 \rho\,(\omega_l = n\omega) \tag{28}$$

Par la suite, on n'étudiera que le cas p = 1. Nous négligerons, dès à présent, l'effet des termes d'émission spontanée, dont l'importance est très faible aux intensités laser que nous utilisons expérimentalement. Il est

utile, pour fixer les idées, de donner les valeurs numériques des différents couplages pour l'ionisation à 3 + 1 photons du Césium (6S-6F) telles qu'elles ont été calculées théoriquement. Ces valeurs sont données pour $I = 5.10^7$ W/cm^2.

$$\begin{cases} \alpha\,|\mathcal{E}|^2 = 1{,}88.10^{10} \text{ rad/sec} \quad / 52, 61, 66 / \\ \gamma\,|\mathcal{E}|^2 = 3{,}6\ .10^{8} \text{ rad/sec} \quad \text{(Gontier et al. / 53, 61 /)} \\ \qquad\quad \text{ou } 4{,}23.10^{9} \text{ rad/sec} \quad \text{(Crance / 66 /)} \\ r_{01}|\mathcal{E}|^3 = 6\ \ .10^{5} \text{ rad/sec} \quad / 53 / \\ \qquad\quad \text{ou } 6{,}7\ .10^{7} \text{ rad/sec} \quad / 66 / \end{cases} \tag{29}$$

La valeur de α a été confirmée expérimentalement par l'équipe de Morellec / 52 / (cf. Chapitre II). La largeur d'ionisation $\gamma|\mathcal{E}|^2$ est masquée par certaines largeurs expérimentales, et il semble malheureusement difficile de trancher entre les valeurs transcrites en (29). Quant à la valeur numérique du couplage à 3 photons, elle est en fait de peu d'importance pour la physique du phénomène. On verra en effet que, dès l'instant où ce couplage est nettement inférieur à tous les autres, sa valeur ne joue que par une multiplication de la probabilité d'ionisation par un facteur constant. Or, cette valeur absolue de la probabilité d'ionisation P^{ION} est pratiquement inaccessible aux expériences, sauf à admettre des marges d'erreur très importantes.

III.3 - RÉSOLUTION DES ÉQUATIONS DANS LE CAS D'UN CHAMP LASER MONOMODE

Si le champ incident $\mathcal{E}(t)$ est en fait indépendant du temps et d'intensité certaine (champ cohérent), l'équation d'évolution (26) est linéaire à coefficients c nstants, donc peut être résolue facilement par les techniques habituelles. Toutefois, en pareil cas, le formalisme de la matrice densité est inadapté, et il suffit de remarquer que l'équation (26) équivaut à :

$$i\frac{d}{dt}\ |\psi> = H_{eff}\ |\psi>\ , \text{ avec } (\sigma_{ij}) = |\psi><\psi| \tag{30}$$

$$H_{eff} = \begin{pmatrix} 0 & -r_{01}\,\epsilon^{m} \\ -r_{01}^{*}\,\epsilon^{*m} & -(\Delta-\alpha|\epsilon|^{2})-i\,\gamma\,|\epsilon|^{2p}/2 \end{pmatrix} \qquad (31)$$

La résolution de l'équation (30) par diagonalisation est immédiate, et on a :

$$|\psi(t)> = \frac{1}{2v}\cdot\Big[\big((v-u)\,e^{i(u+v)t} + (u+v)\,e^{i(u-v)t}\big)|0> + (r_{01}^{*}\,(e^{i(u+v)t} - e^{i(u-v)t}))\;|1>\Big] \qquad (32)$$

pour un atome initialement dans l'état fondamental $|0>$. On a posé :

$$u = \frac{1}{2}\,(\Delta - \alpha\,|\epsilon|^{2} + i\,\frac{\gamma}{2}\,|\epsilon|^{2p})$$
$$v = \sqrt{u^{2} + |r_{01}|^{2}\,|\epsilon|^{2m}} \qquad (33)$$

Un calcul facile, mais long, peut montrer que les coefficients (σ_{ij}) correspondant à (32) vérifient l'équation d'évolution (25). On peut déduire immédiatement la probabilité d'ionisation par :

$$P^{ION}(t) = 1 - |C_0(t)|^{2} - |C_1(t)|^{2} \qquad \text{avec :} \qquad (34)$$

$$|\psi(t)> = C_0(t)\;|0> + C_1(t)\;|1> + \text{(coefficients du continuum)}$$

On remarque alors que, pour notre cas expérimental, $|r_{01}\,\epsilon^{m}|$ étant très inférieur aux autres couplages, on peut développer l'équation (34) en puissance de ε, avec :

$$\varepsilon = \frac{|r_{01}\,\epsilon^{3}|^{2}}{(\Delta - \alpha\,|\epsilon|^{2})^{2} + (\frac{\gamma}{2}\,|\epsilon|^{2})^{2}} \qquad (35)$$

ε représente la population de l'état excité.

En ne gardant que les termes du premier ordre, on a alors / 53 / :

$$v-u = ((\Delta - \alpha\,|\epsilon|^2) - i\,\gamma\,|\epsilon|^2/2)$$
$$v+u = (\Delta - \alpha\,|\epsilon|^2)\,(\tfrac{1}{2} + \varepsilon) + i\,\tfrac{\gamma}{2}\,|\epsilon|^2\,(\tfrac{1}{2} - \varepsilon) \qquad (36)$$

$$p^{ION}(t) = 1 - \exp(\varepsilon\,\gamma\,|\epsilon|^2\,t) \qquad (37)$$

On a négligé, dans cette dernière formule, des termes d'ordre relatif $\exp(-(\gamma/2)\,|\epsilon|^2\,t) \cong 10^{-4}$ pour t = 50 nsec, $I = 5.10^7$ W/cm^2.

Si l'on se place de plus à des temps d'interaction tels que la probabilité d'ionisation soit petite, on obtient un taux d'ionisation indépendant du temps :

$$P_{CCM}^{ION} = \varepsilon\,\gamma\,|\epsilon|^2\,t = \frac{\gamma\,|r_{01}|^2\,|\epsilon|^{2m+2}\,t}{(\Delta - \alpha\,|\epsilon|^2)^2 + (\frac{\gamma}{2}\,|\epsilon|^2)^2} \qquad (38)$$

Pour les valeurs numériques de / 61, 53 /, on trouve un taux de 4.10^3 s^{-1} à la résonance. La dernière formule, valable pour $\varepsilon\,\gamma\,|\epsilon|^2\,t \ll 1$, $\exp(\gamma\,|\epsilon|^2\,t/2) \gg 1$ et $|r_{01}\,\epsilon^m| \ll \gamma\,|\epsilon|^2$, constitue ce que l'on appelle l'approximation à un taux / 53 /. Elle contient plusieurs caractéristiques de la physique de l'ionisation résonnante 6S-6F du Césium :

- probabilité résonnante d'ionisation proportionnelle au carré de l'éclairement laser,
- largeur d'ionisation et déplacement de la fréquence de résonance proportionnels à l'éclairement laser.

III.4 - MODÈLE EN BANDE NULLE (LASER MULTIMODE)

Dans le cas où les fluctuations du champ laser sont très lentes devant les temps caractéristiques de l'évolution de l'atome, on peut calculer la probabilité d'ionisation dans un champ de statistique gaussienne en moyennant simplement la probabilité calculée en champ cohérent sur la distribution statistique de l'éclairement laser, $P(I_1) = I_o^{-1} \exp(-I_1/I_o)$ / 67-70 / :

c'est notre modèle de champ gaussien monochromatique (C.G.M.) qu'on utilise alors.

Rappelons que le fait de l'appliquer lorsque sa condition de validité n'est pas rigoureusement vérifiée (la largeur de raie laser étant du même ordre de grandeur que les couplages atomiques) revient à ne pas prendre en compte les effets propres à la largeur spectrale laser pour ne conserver que ceux de la statistique de l'éclairement. C'est ce que nous allons faire ici (et c'est la procédure utilisée pour la majorité des calculs publiés).

Quant aux ordres de grandeur expérimentaux, on a vu que $\gamma_L \sim 3.10^9$ Hz, ce qui montre, par comparaison avec (29), que nous sommes effectivement en dehors du domaine de validité du modèle C.G.M.

La probabilité d'ionisation pour un champ gaussien "en bande nulle" (C.G.M.) s'écrit donc :

$$P_{CGM}^{ION} = \int_o^\infty I_o^{-1} \exp(-I/I_o)\, P_{CCM}^{ION}(I)\, dI \qquad (39)$$

Un calcul très complet sur l'ionisation à 3 + 1 photons du Césium traitée en bande nulle a été publié / 71 /. La figure III.4 montre deux courbes en traits pleins donnant la probabilité d'ionisation en fonction du désaccord Δ pour $I = 5.10^7$ W/cm^2, avec des champs laser cohérent et gaussien. On voit que les profils de résonance pour les deux types de champ diffèrent très notablement : la courbe de résonance cohérente est beaucoup plus haute et plus étroite que sa contrepartie gaussienne.

Pour comprendre physiquement ces propriétés, il faut remarquer que le décalage Stark est beaucoup plus grand (50 fois d'après / 53, 61 /) que la largeur à mi-hauteur du profil de résonance cohérent ($\gamma |\epsilon|^2$ dans le cadre de l'approximation à un taux). Ce fait est d'ailleurs assez général. On peut alors approcher, dans l'intégrale (39) la lorentzienne (38) décrivant la résonance par une distribution de Dirac / 72 / :

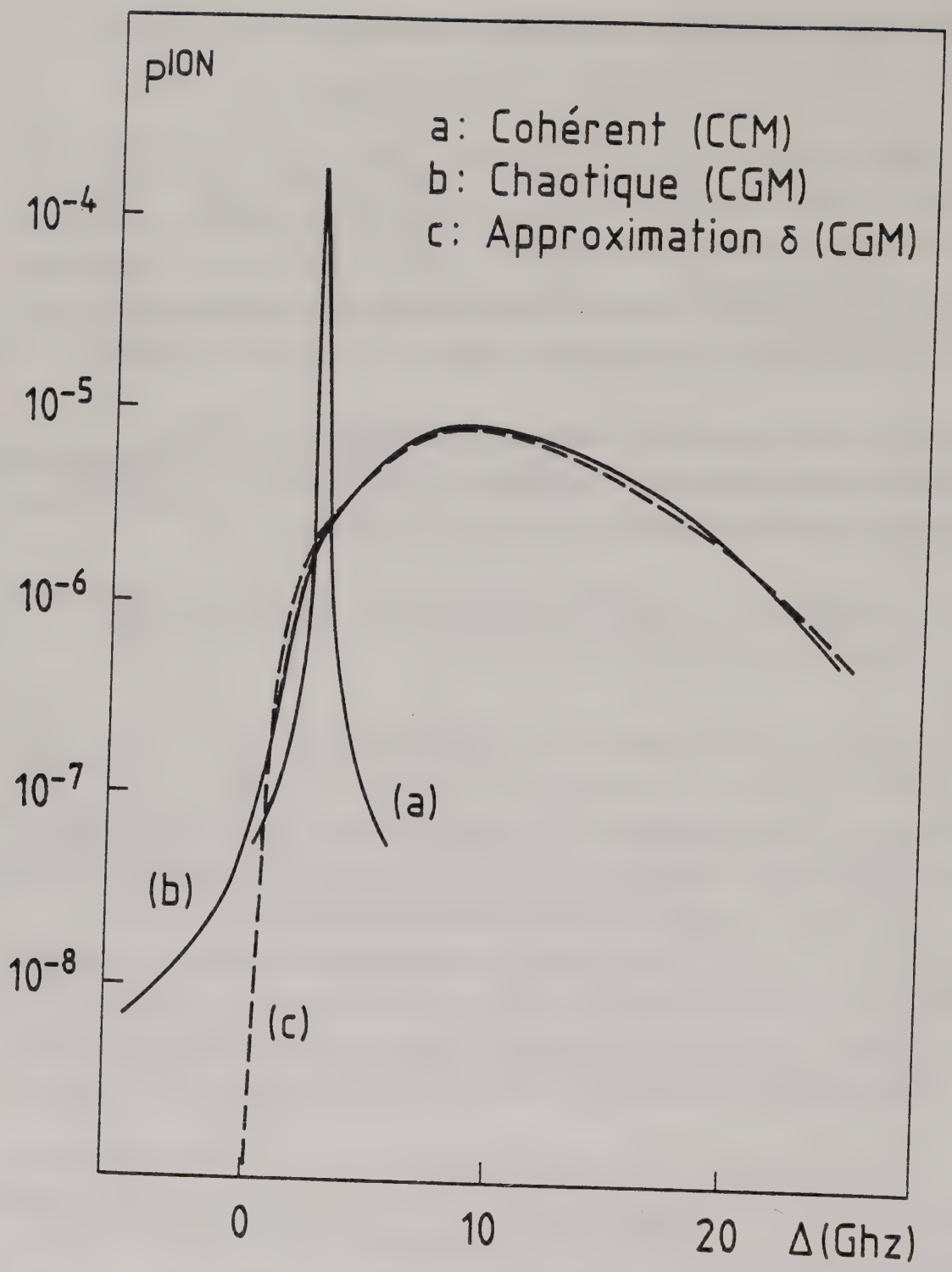


Figure III.4 - Probabilité d'ionisation en fonction du désaccord à la résonance Δ (modèle en bande nulle).

$$P_{CGM}^{ION} = \int_0^\infty \frac{1}{\langle|\epsilon|^2\rangle} \exp - (|\epsilon|^2/\langle|\epsilon|^2\rangle) \cdot \frac{\gamma\, r_{01}^2 \cdot |\epsilon|^8\, t}{(\Delta - \alpha|\epsilon|^2)^2 + (\frac{\gamma}{2}|\epsilon|^2)^2} d\,(|\epsilon|^2)$$

$$\cong \frac{\gamma\, |r_{01}^2|\, t}{\langle|\epsilon|^2\rangle} \cdot \int_0^\infty \exp - (|\epsilon|^2/\langle|\epsilon|^2\rangle) \cdot |\epsilon|^6 \cdot \frac{2\pi}{\gamma} \cdot \delta\,(\Delta - \alpha|\epsilon|^2)\, d\,(|\epsilon|^2) \tag{40}$$

$$= \frac{2\pi}{\alpha} \cdot |r_{01}|^2 \cdot (\langle|\epsilon|^2\rangle)^2 \cdot t \cdot \exp\left(-\frac{\Delta}{\alpha\langle|\epsilon|^2\rangle}\right) \cdot \left(\frac{\Delta}{\alpha\langle|\epsilon|^2\rangle}\right)^3 \tag{41}$$

La courbe (c) de la figure III.4 représente la courbe donnée par cette "approximation δ" (équation (41)). On voit qu'une telle approximation reproduit correctement le comportement de la probabilité d'ionisation au voisinage de la résonance. Ainsi, le décalage Stark "étale", du fait des fluctuations d'éclairement, le profil de résonance. De plus, le sommet de la courbe C.G.M. est décalé, d'après (41) de trois fois le décalage Stark en lumière cohérente, puisque $e^{-x}\, x^3$ est maximal en x = 3.

On montrerait facilement que cette analyse reste valable pour une ionisation à (m + 1) photons avec résonance à m photons, pour peu que l'on s'en tienne à des éclairements assez faibles, permettant de rester dans le domaine de validité de l'approximation à un taux. Une formule analogue à (41) montre immédiatement que le décalage du maximum de la probabilité d'ionisation (le "décalage Stark effectif") est m fois plus grand en champ C.G.M. qu'en champ cohérent.

L'approximation à un taux étant raisonnable pour la gamme d'éclairement utilisée dans nos expériences, on conclut que dans le cadre d'un calcul en bande nulle les effets d'une statistique gaussienne de la lumière laser sont essentiellement :

- une forte décroissance de la probabilité d'ionisation à la résonance,
- un fort élargissement de cette courbe de résonance,
- un triplement du décalage Stark effectif.

III.5 - MODÈLE À LARGE BANDE (LASER MULTIMODE)

Dans le cas, inverse du précédent, où les couplages atomiques sont très inférieurs à la largeur de bande γ_L du laser, la technique de résolution du système d'équations différentielles (26) est évidemment très différente. On repart des équations décrivant la dynamique du système dans l'approximation à deux niveaux :

$$(20) \quad \dot{\sigma}_{01} + (i\,(\Delta - \alpha|\mathcal{E}|^2) + \frac{\gamma}{2}\,|\mathcal{E}|^2)\,\sigma_{01} = i\,\mathcal{E}^m\,r_{01}\,(\sigma_{11} - \sigma_{00})$$

$$(22) \quad \dot{\sigma}_{11} + \gamma|\mathcal{E}|^2\,\sigma_{11} = -\,2\,\mathrm{Im}\,(\mathcal{E}^{*m}\,r_{01}{}^*\,\sigma_{01})$$

$$(24) \quad \dot{\sigma}_{11} + \dot{\sigma}_{00} = -\,\gamma|\mathcal{E}|^2\,\sigma_{11}$$

On considère alors, dans ces équations, que $\mathcal{E}(t)$ est une fonction aléatoire à bande large, de statistique gaussienne. Intégrons alors formellement l'équation (20) de t_o à t, avant de multiplier par $\mathcal{E}^{*m}$ et de prendre la moyenne statistique du résultat :

$$< \sigma_{01}\ \mathcal{E}^{*m}(t) > =$$

$$i\,r_{01} \int_{t_o}^{t} \exp\,(i\,\Delta\,(t'-t)) < \exp\,(i(\alpha + i\,\tfrac{\gamma}{2}) \int_{t'}^{t} |\,\mathcal{E}(t'')|^2\,dt''$$

$$\mathcal{E}^m(t')\,\mathcal{E}^{*m}(t) > .\,< \sigma_{11}(t') - \sigma_{00}(t') > dt' \ + \text{terme homogène} \qquad (42)$$

On a décorrélé, ici, les fluctuations lentes des populations des fluctuations rapides de l'amplitude du champ laser, en écrivant :

$$< (\sigma_{11} - \sigma_{00})\ f(\mathcal{E}) > \cong < f(\mathcal{E}) > .\,< \sigma_{11} - \sigma_{00} >$$

C'est l'approximation essentielle du modèle à large bande. Si l'on suppose que l'on intègre sur une échelle de temps telle que l'on ait

$(\alpha\ |\mathcal{E}|^2)^{-1}$, $(\gamma\ |\mathcal{E}|^2)^{-1} \gg t - t_o \gg \gamma_L^{-1}$, on peut négliger le terme homogène de (42) et écrire :

$$< \sigma_{01} \mathcal{E}^{*m} >_t = \int_{t_o}^{t} i\ r_{01}\ \exp\ (i\ \Delta(t'-t))\ \psi\ (t-t')\ < \sigma_{11}(t') - \sigma_{00}(t') >\ dt' \tag{43.a}$$

avec :

$$\psi\ (t-t') = < \exp\ (i\ (\alpha + i\ \tfrac{\gamma}{2}) \int_{t'}^{t} |\mathcal{E}(t'')|^2\ dt'')\ \ \mathcal{E}^m(t')\ \mathcal{E}^{*m}(t) >$$

et on calcule alors $\psi\ (t-t')$ grâce au théorème des moments pour un processus gaussien :

$$\psi\ (t-t') = m!\ |\mathcal{E}_o|^{2m}\ (g(t-t'))^{m-1}\ \{\ g(t-t')\ (1 + i\ (\alpha + i\ \tfrac{\gamma}{2})\ |\mathcal{E}_o|^2\ (t-t')) +$$

$$+ m\ |\mathcal{E}_o|^2\ i\ (\alpha + i\ \tfrac{\gamma}{2})\ \int_{t'}^{t} g\ (t-t'')\ g\ (t''-t')\ dt''\ \ \} \tag{43.b}$$

avec :

$$|\mathcal{E}_o|^2 = <|\mathcal{E}|^2> \quad \text{et} \quad < \mathcal{E}^*(t)\ \mathcal{E}(t') > = |\mathcal{E}_o|^2\ g\ (t-t')$$

Pour un laser ayant une forme de raie lorentzienne, on a :

$$g\ (t-t') = \exp\ (-\frac{\gamma_L}{2}\ |t-t'|)$$

$$\psi\ (t-t') = m!\ |\mathcal{E}_o|^{2m}\ \exp\ \{\ -\ m\ \frac{\gamma_L}{2}\ .\ |t-t'| + i\ (m+1)\ (\alpha + i\ \tfrac{\gamma}{2})\ |\mathcal{E}_o|^2\ (t-t')\ \} \tag{44}$$

Si on dérive (42) en y reportant ce résultat particulier, on a :

$$(\frac{d}{dt} + i\ (\Delta - (m+1)\ \alpha\ |\mathcal{E}_o|^2) + (m+1)\ \tfrac{\gamma}{2}\ |\mathcal{E}_o|^2 + m\ \tfrac{\gamma_L}{2})\ < \sigma_{01}\ \mathcal{E}^{*m}(t) > =$$

$$= i\ r_{01}\ |\mathcal{E}_o|^{2m}\ m!\ < \sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t) > \tag{45}$$

D'autre part, en moyennant (22) et (24) on obtient aisément, grâce à la possibilité de décorréler :

$$\frac{d}{dt} < \sigma_{11} > + \gamma \, |\epsilon_o|^2 \, . < \sigma_{11} > = - 2 \, \mathrm{Im}(<\sigma_{01} \, \epsilon^{*m} > r_{01}{}^*) \qquad (46)$$

$$\frac{d}{dt} < \sigma_{11} + \sigma_{00} > = - \gamma \, |\epsilon_o|^2 < \sigma_{11} > \qquad (47)$$

Dans le cas où la forme de raie n'est pas lorentzienne, il reste possible d'évaluer ψ (t-t'), car grâce au théorème des moments il suffit pour cela de connaître la fonction d'autocorrélation d'ordre 1, donc théorème de Wiener-Khintchine) la forme de raie. On obtient alors un système intégro-différentiel qui n'est résoluble que numériquement, mais on a là une possibilité de traiter une raie laser non-lorentzienne.

Dans le cas lorentzien, la dynamique de la matrice-densité moyennée sur les fluctuations du champ est résumée, d'après (45-47), par l'équation d'évolution analogue à (26) :

$$i \frac{d}{dt} \begin{vmatrix} < \sigma_{01} \, \epsilon^{*m} > \\ < \sigma_{10} \, \epsilon^{m} > \\ < \sigma_{11} > \\ < \sigma_{00} > \end{vmatrix} = M_{CGL} \begin{vmatrix} < \sigma_{01} \, \epsilon^{*m} > \\ < \sigma_{10} \, \epsilon^{m} > \\ < \sigma_{11} > \\ < \sigma_{00} > \end{vmatrix} \quad \text{avec } M_{CGL} = \qquad (48)$$

$$\begin{pmatrix} \Delta - (m+1)(\alpha + i\frac{\gamma}{2})|\epsilon_o|^2 - \frac{im\gamma_L}{2} & 0 & -r_{01} m! |\epsilon_o|^{2m} & m! r_{01} |\epsilon_o|^{2m} \\ 0 & -\Delta + (m+1)(\alpha - i\frac{\gamma}{2})|\epsilon_o|^2 - \frac{im\gamma_L}{2} & m! r_{01}^* |\epsilon_o|^{2m} & -m! r_{01}^* |\epsilon_o|^{2m} \\ - r_{01}^* & r_{01} & -i\gamma |\epsilon_o|^2 & 0 \\ r_{01}^* & - r_{01} & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Par comparaison avec (26), on voit que / 64 / :

- les fluctuations du champ accroissent le couplage effectif r_{01} d'un facteur m! , le déplacement Stark et la largeur d'ionisation d'un facteur (m+1),
- un terme supplémentaire proportionnel à la largeur de raie laser s'ajoute à l'amortissement des éléments non-diagonaux de la matrice-densité.

Grâce à l'amortissement rapide des cohérences, on peut les éliminer adiabatiquement dans (48). On obtient alors des équations à taux :

$$i\left(m\frac{\gamma_L}{2} + (m+1)\frac{\gamma}{2}|\epsilon_o|^2\right) - \left(\Delta - (m+1)\alpha|\epsilon_o|^2\right) \langle \sigma_{01}\epsilon^{*m}\rangle =$$

$$= m!\, r_{01}\, \epsilon_o^{2m} \langle \sigma_{00} - \sigma_{11}\rangle \qquad (49)$$

D'où :

$$\frac{d}{dt}\langle \sigma_{11}\rangle = i\, r_{01}^* \frac{m!\,|\epsilon_o|^{2m}\, r_{01} \langle \sigma_{00} - \sigma_{11}\rangle}{i\left(m\frac{\gamma_L}{2} + (m+1)\frac{\gamma}{2}|\epsilon_o|^2\right) - \left(\Delta - (m+1)\alpha|\epsilon_o|^2\right)}$$

$$+ \text{c.c.} - \gamma|\epsilon_o|^2 \langle \sigma_{11}\rangle = W\left(\langle \sigma_{00} - \sigma_{11}\rangle\right) - \gamma|\epsilon_o|^2 \langle \sigma_{11}\rangle \qquad (50)$$

et de même : $\frac{d}{dt}\langle \sigma_{00}\rangle = W \cdot \langle \sigma_{11} - \sigma_{00}\rangle$

L'équation d'évolution est alors donnée par :

$$\frac{d}{dt} \cdot \begin{vmatrix} \langle \sigma_{11}\rangle \\ \langle \sigma_{00}\rangle \end{vmatrix} = \begin{pmatrix} -W - \gamma|\epsilon_o|^2 & W \\ W & -W \end{pmatrix} \cdot \begin{vmatrix} \langle \sigma_{11}\rangle \\ \langle \sigma_{00}\rangle \end{vmatrix} \qquad (51)$$

$$W = 2\,m!\,|r_{01}|^2\,|\epsilon_o|^{2m}\,.\,\frac{m\frac{\gamma_L}{2} + (m+1)\frac{\gamma}{2}\,.\,|\epsilon_o|^2}{(\Delta - (m+1)\,\alpha|\epsilon_o|^2)^2 + (m\frac{\gamma_L}{2} + (m+1)\frac{\gamma}{2}.|\epsilon_o|^2)^2} \qquad (52)$$

Il est alors facile de trouver la probabilité d'ionisation :

$$P^{ION}_{CGL}(t) = 1 - \frac{1}{2B}\{(A+B)\exp(-(A-B)\,t/2) + (A-B)\exp(-(A+B)\,t/2)\} \qquad (53)$$

avec $A = 2W + \gamma|\epsilon_o|^2$, $B = (\gamma^2|\epsilon_o|^4 + 4W^2)^{1/2}$

Si l'on se place dans les conditions de validité de l'approximation à un taux mentionnées plus haut ($\exp(\gamma|\epsilon_o|^2 t) \gg 1$, $Wt \ll 1$), il vient / 65 / :

$$P^{ION}_{CGL} = W_{CGL}\,t \qquad (54)$$

$$W_{CGL} = 2\,m!\,|r_{01}|^2\,|\epsilon_o|^{2m}\,.\,\frac{m\frac{\gamma_L}{2} + (m+1)\frac{\gamma}{2}\,|\epsilon_o|^2}{(\Delta - (m+1)\,\alpha\,|\epsilon_o|^2)^2 + (m\frac{\gamma_L}{2} + (m+1)\frac{\gamma}{2}\,|\epsilon_o|^2)^2} \qquad (55)$$

Nous avons donc l'expression du taux d'ionisation pour un champ gaussien, en bande large (et pour une forme de raie lorentzienne).

III.6 - CAS DU LASER À DIFFUSION DE PHASE (CDP)

Si la largeur de raie du laser peut être attribuée uniquement à des fluctuations de phase, l'éclairement restant constant, on peut moyenner exactement l'équation d'évolution (26), le champ laser étant décrit par le modèle CDP :

$$\text{CDP}\begin{cases} E(t) = \epsilon_o \exp(i\omega t + i\phi(t)) + c.c. \\ \frac{d\phi}{dt} = \sqrt{\gamma_L}\,\xi(t) \qquad \text{et} \quad \langle \xi(t)\,\xi(t+\tau)\rangle = \delta(\tau) \end{cases}$$

Utilisant comme vecteur d'état les quantités ($< \sigma_{01} \exp(-im\phi) >$, $< \sigma_{10} \exp(im\phi) >$, $< \sigma_{11} >$, $< \sigma_{00} >$) on se ramène à une équation du type de (Appendice A, équation (15)). Le théorème donné alors dans cet Appendice permet d'obtenir une équation d'évolution moyenne analogue à (48) mais exacte / 65, 73 / quelle que soit la valeur de γ_L :

$$i \frac{d}{dt} \begin{vmatrix} < \sigma_{01} e^{-im\phi} > \\ < \sigma_{10} e^{im\phi} > \\ < \sigma_{11} > \\ < \sigma_{00} > \end{vmatrix} = M_{CDP} \begin{vmatrix} < \sigma_{01} e^{-im\phi} > \\ < \sigma_{10} e^{im\phi} > \\ < \sigma_{11} > \\ < \sigma_{00} > \end{vmatrix} \quad \text{avec } M_{CDP} = \tag{56}$$

$$\begin{pmatrix} \Delta - \alpha|\epsilon_o|^2 - i\frac{\gamma}{2}|\epsilon_o|^2 - im^2\frac{\gamma_L}{2} & 0 & -r_{01}|\epsilon_o|^{2m} & r_{01}|\epsilon_o|^{2m} \\ 0 & -\Delta + \alpha|\epsilon_o|^2 - i\frac{\gamma}{2}|\epsilon_o|^2 - im^2\frac{\gamma_L}{2} & r_{01}^*|\epsilon|^{2m} & -r_{01}^*|\epsilon_o|^{2m} \\ -r_{01}^* & r_{01} & -i\gamma|\epsilon_o|^2 & 0 \\ r_{01}^* & -r_{01} & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

On voit que, si un amortissement supplémentaire des cohérences atomiques apparaît encore (d'ailleurs différent du modèle CGL), les facteurs multiplicatifs relatifs à α, γ et r_{01} ont disparu, ce qui montre clairement qu'ils ont pour cause les fluctuations d'éclairement. Notons que l'équation (56) est valable pour une largeur de raie laser quelconque. Evidemment on peut obtenir, en bande large et pour les conditions de validité de l'approximation à un taux, des équations analogues à (50-55). Le taux d'ionisation est alors donné par :

$$\frac{dP_{CDP}^{ION}}{dt} = W_{CDP} = 2|r_{01}|^2 |\epsilon_o|^{2m} \cdot \frac{m^2\frac{\gamma_L}{2} + \gamma|\epsilon_o|^2/2}{(\Delta - \alpha|\epsilon_o|^2)^2 + (m^2\frac{\gamma_L}{2} + \gamma|\epsilon_o|^2/2)^2} \tag{57}$$

III.7 - CAS D'UNE LARGEUR DE RAIE QUELCONQUE (LASER MULTIMODE)

Dans l'hypothèse où la largeur de raie laser est du même ordre de grandeur que les couplages atomiques, il est encore possible de calculer la probabilité d'ionisation en modèle C.G.L., mais au prix de l'emploi d'un formalisme mathématique plus lourd / 74 /. On se bornera ici à décrire rapidement le principe de tels calculs ; il est en effet difficile d'en tirer des informations sous forme analytique (sauf pour les deux cas extrêmes d'une largeur de raie laser très grande ou très petite : on retrouve alors "à la main" les formules (39) et (55)).

Rappelons que le modèle C.G.L. est défini par une équation de Langevin :

$$\text{C.G.L.} \quad \begin{cases} E(t) = \epsilon(t) \exp(i\omega t) + \text{c.c.} \\ \dot{\epsilon} + \frac{\gamma_L}{2} \epsilon = \frac{\gamma_L |\epsilon_0|^2}{2} \cdot \xi_c(t) \\ < \xi_c(t) \, \xi_c^*(t+\tau) > = 2\delta(\tau) \end{cases}$$

La diffusion de la densité de probabilité de ϵ dans le plan complexe est décrite par l'équation de Fokker-Planck associée / 36 / :

$$\frac{\partial P(\epsilon)}{\partial t} = L \cdot (P(\epsilon)) = \frac{\gamma_L}{2} \cdot \nabla_\epsilon (\epsilon P) + \frac{\gamma_L}{4} \epsilon_0^2 \Delta_\epsilon P \qquad (58)$$

Nous désirons obtenir la moyenne d'ensemble des solutions de l'équation d'évolution (26) :

$$\frac{d\sigma}{dt} = M(\epsilon) \cdot \sigma$$

où $M(\epsilon)$ est une matrice fonction non linéaire de ϵ. On montre alors / 75 / que cette moyenne s'obtient <u>exactement</u> en résolvant une équation aux dérivées partielles associée :

$$\frac{d}{dt} (S(\epsilon, t)) = M(\epsilon) \, S(\epsilon, t) + L_\epsilon (S(\epsilon, t)) \qquad (59)$$

et on a alors :

$$\langle \sigma (t) \rangle = \int_C S (\epsilon, t) \, d^2\epsilon$$

Dans cette équation, S (ϵ, t) représente, en somme, la contribution à l'espérance mathématique de σ (t) apportée par l'ensemble des histoires possibles de l'amplitude du champ aboutissant en ϵ à l'instant t.

On voit que le premier terme de (59), proportionnel à M (ϵ) s'interprète comme un terme de convection, le deuxième comme un terme de diffusion. L'équation (59) est résolue en développant S (ϵ, t) sur les fonctions propres de l'opérateur L :

$$S (\epsilon, t) = \sum_{n > o} \phi_{np} (\epsilon) \, s_{np} (t) \quad ; \quad L_\epsilon \, \phi_{np} (\epsilon) = \Lambda_{np} \, \phi_{np} (\epsilon) \qquad (60)$$

Les fonction propres ϕ_{np} s'expriment à l'aide de polynômes de Laguerre généralisés / 74 /. On aboutit, en reportant (60) dans (59) à un système illimité d'équations différentielles linéaires à coefficients constants, portant sur les fonctions $s_{np}(t)$. Ce système est alors résolu par troncature et intégration numérique.

Notons que cette procédure a été appliquée à des phénomènes optiques autres que l'IMPR / 76, 77 /.

III.8 - CONCLUSIONS

L'essentiel des enseignements physiques que l'on peut tirer des calculs ci-dessus s'obtient en considérant les différentes expressions du taux d'ionisation :

- champ cohérent :

$$(38) \qquad \frac{dP^{ION}}{dt} = \frac{\gamma \, | \epsilon_o |^{2m+2} \cdot |r_{01}|^2}{(\Delta - \alpha \, | \epsilon_o |^2)^2 + (\frac{\gamma}{2} \, | \epsilon_o |^2)^2}$$

- champ à diffusion de phase :

$$(57) \qquad \frac{dP^{ION}}{dt} = |r_{01}|^2 \, |\epsilon_o|^{2m} \, \frac{m^2 \gamma_L + \gamma |\epsilon_o|^2}{(\Delta - \alpha |\epsilon_o|^2)^2 + (\frac{\gamma}{2} |\epsilon_o|^2 + m^2 \frac{\gamma_L}{2})^2}$$

- champ chaotique en bande nulle ($\alpha >> \gamma$)

$$(41) \qquad \frac{dP^{ION}}{dt} = \frac{2\pi |r_{01}|^2}{\alpha} \cdot |\epsilon_o|^{2m-2} \exp\left(\frac{-\Delta}{\alpha |\epsilon_o|^2}\right) \cdot \left(\frac{\Delta}{\alpha |\epsilon_o|^2}\right)^3$$

- champ chaotique lorentzien (C.G.L.) en bande large :

$$(55) \qquad \frac{dP^{ION}}{dt} = m! \, |r_{01}|^2 . |\epsilon_o|^{2m} \, \frac{m \gamma_L + (m+1) \gamma |\epsilon_o|^2}{(\Delta - \alpha (m+1) |\epsilon_o|^2)^2 + (m \frac{\gamma_L}{2} + \frac{m+1}{2} \gamma |\epsilon_o|^2)^2}$$

Les principales caractéristiques de ces taux sont rassemblés dans le Tableau III.1 ; chaque quantité est rapportée à la valeur correspondante pour le laser cohérent monochromatique. On voit que, alors que la hauteur et la largeur de la courbe de résonance dépendent de façon compliquée des paramètres α/γ , γ_L, etc..., le rapport des aires $S = \int P^{ION}(\Delta) \, d\Delta$ pour deux profils d'ionisation tracés respectivement avec des lumières gaussienne et cohérente vaut exactement m!, de façon tout à fait indépendante des paramètres α, γ et γ_L / 33.b /.

Le passage à une statistique gaussienne apporte donc bien à la probabilité d'ionisation un facteur m! pour un processus non-résonnant d'ordre m, comme dans le cas de l'ionisation non-résonnante, mais à condition de considérer, au lieu de la probabilité d'ionisation au maximum du profil, l'intégrale sur le désaccord Δ de cette probabilité, qui est en somme la vraie mesure de la force totale de la résonance.

On constate ensuite que, pour chaque type de statistique, l'élargissement spectral du laser donne lieu, comme on pouvait s'y attendre, à un affaissement de P^{ION}_{MAX} accompagné d'un accroissement de la largeur LTMH du profil de résonance, et le tout à surface constante.

TABLEAU III.1

Paramètres des différents profils de résonance théoriques pour l'approximation à un taux, normalisés au cas du laser cohérent (C.C.M.)

Modèle laser / Paramètre	Cohérent (C.C.M.)	Diffusion de phase (C.D.P.)	Gaussien bande nulle (C.G.M.) $\alpha >> \gamma$	Gaussien bande large (raie lorentzienne) (C.G.L.)
P^{ION}_{MAX}	1	$\frac{\gamma \lvert \epsilon_o \rvert^2}{m^2 \gamma_L}$	$2,11\ \gamma/\alpha$ $(m = 3)$	$(m-1)!\ \frac{\gamma \lvert \epsilon_o \rvert^2}{\gamma_L}$
Largeur de résonance (L.T.M.H.)	1	$\frac{m^2 \gamma_L}{\gamma \lvert \epsilon_o \rvert^2}$	$4,13\ \alpha/\gamma$ $(m = 3)$	$\frac{m \gamma_L}{\gamma \lvert \epsilon_o \rvert^2}$
Aire de la courbe de résonance	1	1	m!	m!
Décalage Stark effectif	1	1	m	m+1

$\alpha|\epsilon_o|^2$: déplacement Stark dynamique de la transition résonnante.

$\gamma|\epsilon_o|^2$: largeur de photoionisation du niveau résonnant supérieur.

γ_L : largeur à mi-hauteur du spectre laser.

m : nombre de photons de la transition $|0\rangle \leftrightarrow |1\rangle$.

Par ailleurs, le décalage Stark effectif (effet précieux pour la comparaison avec l'expérience car il n'est pas affecté par les largeurs expérimentales) est multiplié par m du fait de la statistique gaussienne du champ. L'introduction d'une grande largeur de raie n'a pour effet que de porter à m + 1 ce facteur multiplicatif.

Il faut malheureusement remarquer qu'on ne peut obtenir d'informations sous forme analytique que dans les cas idéalisés d'une largeur de raie évanescente et d'une raie laser Lorentzienne plus grande que les couplages atomiques. On a déjà dit que l'hypothèse d'une raie Lorentzienne est peu réaliste, la puissance spectrale d'une raie laser décroissant beaucoup plus vite que pour une Lorentzienne lorsqu'on s'éloigne du centre de raie de plus d'une demie largeur à mi-hauteur. Ceci fait notamment craindre un désaccord avec l'expérience sur la largeur du profil de résonance. Par ailleurs, on constate que loin de la résonance la comparaison des taux d'ionisation obtenus en lumières cohérente et multimode (C.G.L.) ne donne pas le rapport attendu (m + 1) ! :

$$\frac{dP^{ION}_{CGL} / dt}{dP^{ION}_{CCM} / dt} = (m+1)\,! + m\,! \;\frac{m\,\gamma_L}{\gamma\,|\epsilon_o|^2}\;, \quad \text{si} \quad \Delta \gg \gamma_L \qquad (61)$$

Le terme proportionnel à γ_L provient de la composante spectrale résonnante de la raie laser lorentzienne.

Au total, les modèles théoriques disponibles fournissent des prédictions quantitatives sur les propriétés des profils de résonance pour certains cas limites, ainsi que des renseignements généraux précieux pour la compréhension physique de l'I.M.P.R. en champ laser multimode : notamment la comparaison des formules (38), (41), (55) et (57) donnant les expressions du taux d'ionisation permet de clarifier les rôles respectifs de la statistique de l'éclairement et de la largeur spectrale γ_L.

Par contre, si l'on veut disposer de prédictions théoriques quantitatives hors des cas limites, il faut accepter un traitement entièrement numérique du problème, avec des temps de calcul assez longs. Par exemple, on a dit au Chapitre II que traiter une raie laser de forme réaliste implique

de considérer l'amplitude du champ comme une composante d'un processus markovien à plusieurs dimensions. Il faut donc pour ce faire entreprendre la résolution d'équations analogues à (59-60) mais plus compliquées. Ou bien encore, on peut injecter dans l'équation d'évolution générale (26) un champ $\mathcal{E}(t)$ déterministe formé par la superposition de modes dont les intensités partielles sont imposées par le programmeur et les phases "tirées au sort" par le calculateur. On résoud alors l'équation d'évolution (26) par une méthode numérique, par exemple de type Runge-Kutta. En répétant N fois ce processus pour N jeux de phases tirés au sort, on peut obtenir une moyenne d'ensemble de la probabilité d'ionisation pour un spectre laser quelconque. Ce procédé, qu'on peut qualifier de simulation numérique, est malheureusement très coûteux en temps calcul. Le traitement de statistiques d'éclairement intermédiaires (correspondant à un petit nombre de modes laser) n'est guère possible que par simulation numérique, ou alors en bande nulle par intégration numérique de (39).

Enfin, il n'existe guère de moyens permettant de prendre en compte des corrélations entre modes lasers voisins telles que celles qui apparaissent dans les résultats de l'expérience de Sanchez et Lecompte/ 33 /.

CHAPITRE IV

DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

IV.1 - OBJECTIFS GÉNÉRAUX

Nous avons déjà décrit la motivation physique de nos expériences, ainsi que les raisons qui nous amenèrent à choisir le laser à verre dopé au Néodyme et la transition à 3 photons 6S-6F de l'atome de Césium. Pour réaliser le programme que nous nous étions fixé, les pièces essentielles du dispositif devaient être :

- une enceinte d'interaction contenant la vapeur de Césium, avec un dispositif permettant de mesurer le nombre d'ions formés par le tir laser,
- un oscillateur laser accordable et à nombre de modes variable,
- un ensemble d'appareils de mesure permettant de déterminer, à chaque tir, les propriétés spectrales, spatiales et temporelles de l'impulsion laser.

Des trois, la plus originale et naturellement la plus difficile à réaliser était l'oscillateur laser. Il fallait faire varier indépendamment la largeur spectrale et la longueur d'onde moyenne, tout en maintenant constantes :

- la durée de l'impulsion,
- l'énergie de l'impulsion,
- les propriétés géométriques du faisceau laser dans la zone d'interaction avec le Césium.

En effet, l'ionisation multiphotonique résonnante étant un phénomène fortement non-linéaire en éclairement, deux impulsions lasers de même durée et même énergie peuvent produire des ions en nombres très différents si l'énergie n'est pas répartie de la même façon dans l'espace, par exemple si une des impulsions est plus focalisée que l'autre. De même, les expérimentateurs qui ont mesuré des sections efficaces absolues d'ionisation non résonnante à 2 et 4 photons dans le Césium ont dû porter une attention particulière à la mesure des propriétés géométriques de leurs faisceaux lasers / 78 /.

Pour être certain de ne pas attribuer à la cohérence de la lumière une variation du signal d'ions due en fait à un changement dans la géométrie du faisceau, la meilleure solution consiste à mettre au point un système laser permettant de changer la cohérence temporelle tout en gardant parfaitement constante la structure géométrique de base de la cavité oscillatrice, par simple adjonction d'éléments de sélection en longueur d'onde supplémentaires sur le trajet intracavité du faisceau. Avant de détailler ces procédés de sélection en longueur d'onde, nous décrivons tout d'abord la constitution générale de notre oscillateur laser.

IV.2 - L'OSCILLATEUR À VERRE NÉODYME

a) Le milieu amplificateur

De nombreux ions de terres rares permettent, comme impuretés dans les solides, d'obtenir l'effet laser, et parmi eux le plus important est l'ion Nd^{3+}, contenu à des concentrations de quelques centièmes dans des matrices de verre ou de cristal YAG (Yttrium-Aluminium-Grenat). La transition laser est ici $^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$, le diagramme d'énergie du système étant représenté sur la figure IV.1 / 43, 79 /. Il s'agit d'un laser à quatre niveaux, car le niveau laser inférieur $^4I_{11/2}$ se situe 1.950 cm^{-1} au-dessus du fondamental $^4I_{9/2}$, et sa population à l'équilibre thermique est donc très faible. Cette situation permet d'obtenir plus facilement l'inversion de population. On utilise pour ce faire un pompage optique, plusieurs bandes d'absorption réparties entre 11.000 et 20.000 cm^{-1} contribuant au peuplement du niveau laser supérieur $^4F_{3/2}$.

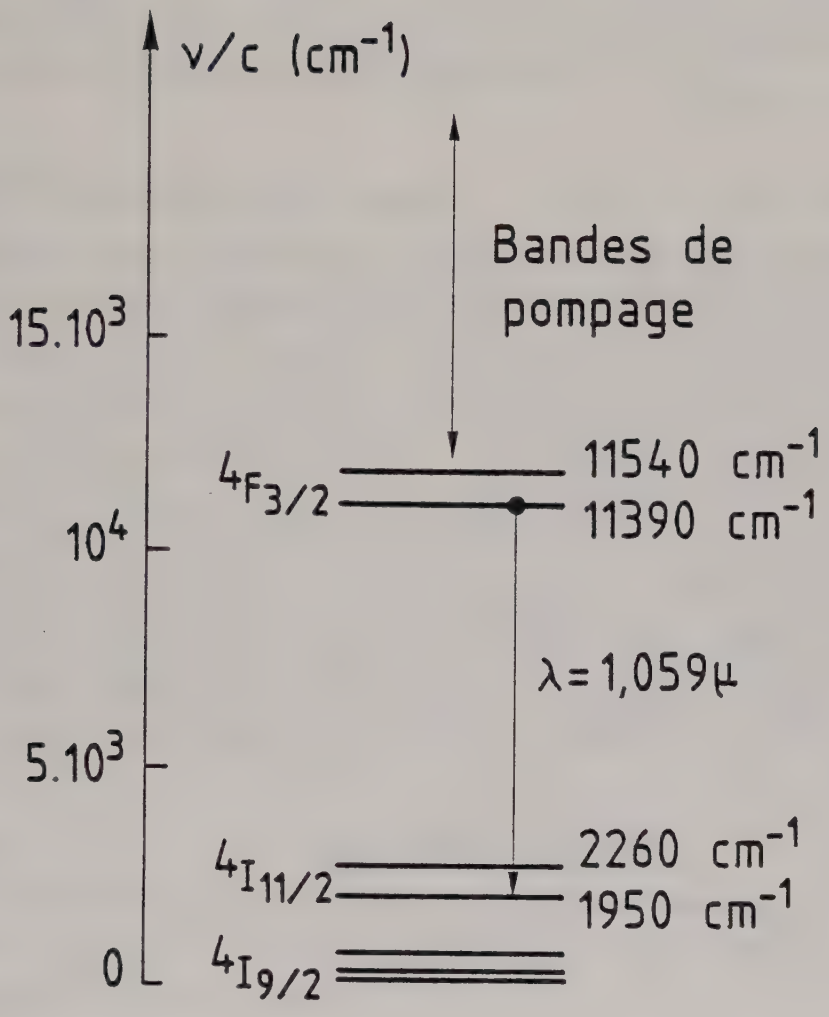


Figure IV.1 - Niveaux d'énergie du laser à verre dopé au Néodyme (les splittings des multiplets ont été exagérés pour la clarté du dessin).

La différence fondamentale entre le verre et le YAG consiste en ce que, pour le verre, le caractère désordonné de la matrice-hôte permet à chaque ion Nd^{3+} d'avoir un voisinage différent. Les couplages entre les électrons optiques de l'ion et les atomes constituant le verre déplacent donc de façon aléatoire les niveaux d'énergie de l'ion Nd^{3+}, provoquant ainsi un fort élargissement inhomogène de la raie laser. Le laser à verre Néodyme pourra donc être accordable sur 100 cm^{-1} environ, contre moins de 1 cm^{-1} pour le YAG. La longueur d'onde de gain maximal, voisine de 1,06 µ, dépend du type de verre utilisé.

Nous avons utilisé pour nos expériences un barreau de verre au silicate (type ED 2 d'Owens - Illinois) de 130 mm de long et 9 mm de diamètre, taillé à l'incidence de Brewster aux deux extrémités afin de favoriser la polarisation verticale dans la cavité. Le pompage optique du barreau est réalisé par deux lampes flash au Xénon, linéaires, disposées de part et d'autre du barreau et parallèlement à celui-ci. Géométriquement, la tête laser est constituée de deux portions de cylindre elliptique aux parois réfléchissantes, un axe focal commun étant occupé par le barreau, les deux autres axes focaux étant occupés chacun par une lampe flash (figure IV.2). Les images des lampes flash fournies par les surfaces miroitantes sont donc confondues avec le barreau laser. Ce système, contrairement à une lampe flash hélicoïdale, assure un pompage préférentiel du centre du barreau.

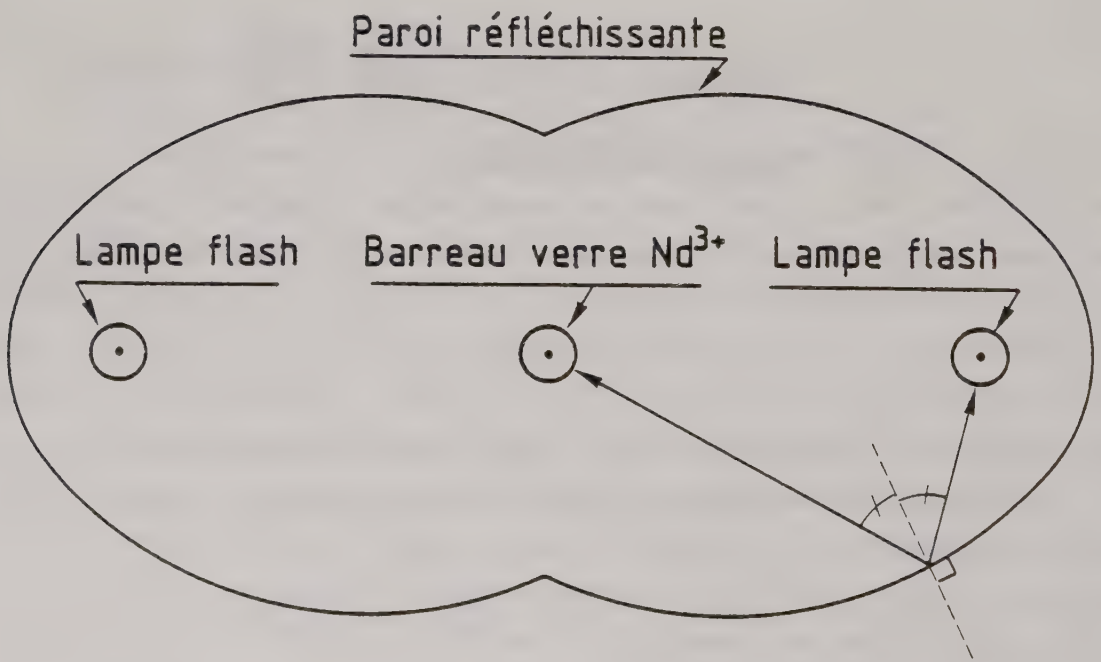


Figure IV.2 - Cavité bi-elliptique pour le pompage du barreau laser (vue en coupe).

Encore du fait de la structure désordonnée du verre, la conductivité thermique du barreau est faible, de l'ordre de 0,01 W/cm.°K / 80 / contre 0,13 W/cm.°K pour le YAG. Or chaque éclair des lampes flash aboutit à la dissipation d'environ 10^3 joules sous forme de chaleur dans le barreau. La nécessité d'évacuer cette chaleur (par circulation d'eau) limite le taux de répétition du laser à deux tirs par minute, alors qu'il existe commercialement des laser YAG donnant 10 tirs par seconde.

b) Déclenchement de la cavité

La durée de l'éclair lumineux fourni par les lampes flash est de l'ordre de quelques centaines de microsecondes. En l'absence de précautions spéciales, l'effet laser se produit dès que l'inversion est suffisante pour que le gain optique du barreau compense les pertes de la cavité. Dès lors l'inversion décroît, l'effet laser cesse, puis reprend dès que le pompage a reconstitué une inversion minimale. On obtient ainsi une série d'impulsions erratiques, dont la durée totale est de l'ordre de celle du flash. Une telle situation étant évidemment peu propice à une expérience de physique, on a recours à l'artifice du déclenchement : on ajoute volontairement une perte supplémentaire dans la cavité, ce qui permet d'atteindre, sans déclencher l'effet laser, une valeur d'inversion anormalement forte. Puis on supprime brutalement cette perte ; le gain optique, proportionnel à la densité d'inversion, étant alors très élevé, on obtient une impulsion laser géante qui détruit très rapidement (en quelques dizaines de nanosecondes) l'inversion de population dans le barreau. L'impulsion unique ainsi obtenue peut atteindre le mégawatt en puissance crête.

On peut utiliser deux moyens pour déclencher une cavité laser :

- la méthode de déclenchement actif consiste à insérer dans la cavité une cellule de Pockels / 43 /, constituée d'un cristal électro-optique K.D.P. et d'un polariseur. Lorsqu'on applique une tension de quelques kilovolts au cristal K.D.P., l'ensemble équivaut à deux polariseurs croisés et les pertes de la cavité sont très fortement augmentées. Lorsque l'inversion de population est maximale, un circuit électronique annule la haute tension en quelques nanosecondes, la cellule de Pockels devient transparente pour une certaine polarisation de la lumière. Nous avons abandonné cette technique,

bien qu'elle présentât des avantages certains, par exemple sur le plan de la synchronisation du laser avec d'autres dispositifs, car il est difficile d'obtenir un fonctionnement en monomode avec une cellule de Pockels. On peut améliorer la situation en débranchant la haute tension en deux étapes / 54, 81 /, mais même ainsi la reproductibilité obtenue est insuffisante.

- la méthode de déclenchement passif, que nous avons choisie, consiste à placer dans la cavité laser une cellule contenant un colorant dilué dans un solvant organique. Lorsqu'il y a encore peu de photons dans la cavité, les molécules de colorant absorbent fortement (en régime linéaire), puis leur absorption sature dès que l'éclairement devient assez fort. Nous avons utilisé le colorant bis(diméthylamino-dithiobenzil)Nickel (B.D.N.) / 82 / en solution dans du dichloréthane. La durée de l'impulsion géante peut être contrôlée en ajustant la concentration du colorant, entre 20 et 100 nanosecondes en largeur totale à mi-hauteur (L.T.M.H.). Le fait que cette méthode permette plus facilement d'obtenir un fonctionnement en monomode peut se comprendre en remarquant que, lorsque des éléments de sélection en longueur d'onde privilégient un mode donné, la cavité se déclenche lorsque ce mode possède une intensité suffisante pour saturer l'absorption du colorant, à un stade où le nombre de photons dans les autres modes est beaucoup plus faible.

c) Méthodes de sélection de modes

Sous des hypothèses très larges, un calcul classique montre que l'expression du champ électrique intracavité pour les différents modes est donnée par / 83 / :

$$E_{pq}(x,y,z,t) \propto \frac{\omega_o}{\omega(Z)} \exp\left(-\frac{x^2+y^2}{\omega^2(z)}\right) H_p\left(\sqrt{2}\,\frac{x}{\omega(Z)}\right) H_q\left(\sqrt{2}\,\frac{x}{\omega(Z)}\right)$$

$$\times \exp\left(-ik\left(z+\frac{x^2+y^2}{2R(z)}\right)\right) \times \exp\left(i(p+q+1)\,\mathrm{Arctg}\,(z/z_o)\right) \qquad (1)$$

où l'on utilise les notations suivantes :

- p et q sont des indices entiers servant à désigner les modes,
- x et y sont les dimensions transverses et z la dimension longitudinale,
- H_p désigne le polynôme d'Hermite d'ordre p,
- ω_o est le rayon minimal du faisceau, pris à $1/e^2$ de la valeur maximale de l'éclairement,
- $\omega(z)$ est le rayon du faisceau, donné par :

$$\omega(z) = \omega_o \cdot (1 + z^2/z_o^2)^{1/2} \qquad (2)$$

où z_o désigne le "paramètre confocal" du faisceau. Les constantes ω_o et z_o sont fonctions de la distance L entre les miroirs et des rayons de courbure R_1 et R_2 de ces miroirs.

- R(z) est le rayon de courbure du front d'onde, donné par :

$$R(Z) = z\ (1 + z_o^2/z^2) \qquad (3)$$

On voit que les modes pour lesquels p = q = 0 présentent la divergence angulaire minimale, et donc permettent beaucoup plus aisément le transport et l'amplification de l'énergie laser. Par ailleurs, la répartition transverse de l'énergie pour ces modes, de forme gaussienne, facilite évidemment l'interprétation des résultats d'une expérience d'ionisation multiphotonique.

On obtient la fréquence d'un mode en écrivant que la phase de l'onde varie d'un multiple entier de 2π lors d'un aller-retour dans la cavité / 83 / :

$$\nu_{pqm} = \frac{c}{2L} \left\{ (m+1) + \frac{1}{\pi} (p + q + 1) \operatorname{Arcos} \left((1 - L/R_1)\ (1 - L/R_2) \right)^{1/2} \right\} \qquad (4)$$

formule où m désigne un indice entier longitudinal qui, avec p et q, caractérise entièrement un mode laser. On utilise la notations TEM_{pqm} (pour Transverse Electro-Magnétique) pour les modes décrits par les formules (1) et (4). D'après (4), les fréquences des modes TEM_{00m} forment une série arithmétique d'accroissement (c/2L).

Dans notre oscillateur, nous avons éliminé les modes autres que TEM_{00} en plaçant sur le trajet du faisceau un diaphragme métallique circu-

laire de 1,5 mm de diamètre, qui contraint le champ laser à s'annuler à une distance de l'axe où le champ de ces modes prendrait encore une valeur non négligeable. De plus, la configuration des lampes flash décrite plus haut, en pompant davantage le centre du barreau, pénalise les modes non TEM_{00}.

Une fois ce point assuré, c'est en jouant sur la sélection des modes longitudinaux, décrits par l'indice m, qu'on obtient l'accordabilité en fréquence et un nombre de modes variable. Un problème se pose tout d'abord : pourrait-on construire la cavité de façon à pouvoir rigoureusement décrire l'expérience par le modèle en bande nulle (cf. Chapitres I et III) ? Rappelons les estimations des quantités caractéristiques de l'interaction laser-atome de Césium donnés par les équations (III.29) à 5.10^7 W/cm^2, qui est l'éclairement moyen utilisé dans nos expériences :

$$\text{(III.29)} \qquad \begin{cases} \alpha\,|\mathcal{E}|^2 = 3 \text{ GHz} \\ \gamma\,|\mathcal{E}|^2 = 57 \text{ MHz ou } 673 \text{ MHz} \\ r_{01}\,|\mathcal{E}|^3 = 95 \text{ KHz ou } 10{,}7 \text{ MHz} \end{cases}$$

Par comparaison, si l'on admet qu'il faut environ une dizaine de modes laser pour que la lumière soit considérée comme gaussienne, l'intervalle spectral libre (I.S.L.) c/2L entre deux modes TEM_{00} adjacents doit être multiplié par 10 pour obtenir la largeur spectrale minimale d'une lumière chaotique. Pour des raisons technologiques, la longueur optique de la cavité ne peut guère aller au-delà de 3 m, ni en-deçà de 30 cm ; ce qui donne un I.S.L. compris entre 50 et 500 MHz, soit une largeur spectrale minimale entre 500 MHz et 5 GHz. Donc on ne pourra jamais se placer rigoureusement dans des conditions de bande nulle, la largeur d'ionisation et la fréquence de Rabi à 3 photons étant dans tous les cas plausibles, du même ordre de grandeur ou plus faibles que la largeur spectrale. Si une cavité longue (de faible I.S.L.) convient bien à la production de lumière incohérente à faible largeur spectrale, l'I.S.L. très faible rend difficile l'obtention d'impulsions monomodes. Puisque nous nous étions imposés de produire les lumières monomode et multimode par la même cavité, il fallait adopter une valeur de L tenant compte de ces deux exigences contradictoires. Il est apparu au cours de la phase de mise au point, qu'une cavité de un mètre de long réalisait un bon compromis, donnant un I.S.L. de 150 MHz.

Nous rappelons maintenant les principes de certaines techniques de sélection de modes :

- Les lames biréfringentes : comme on n'autorise qu'une seule polarisation dans la cavité, en plaçant la plupart des dioptres (dont les faces du barreau laser) à l'incidence de Brewster, une lame biréfringente aura pour cette polarisation une transmission fonction périodique de la fréquence si l'axe optique de la lame est dans le plan de la face d'entrée et fait un angle de 45 degrés avec la polarisation de la lumière. En pareil cas, la lumière se sépare à l'entrée de la lame en deux composantes de polarisations orthogonales, dont l'une se propage selon l'indice ordinaire et l'autre selon l'indice extraordinaire. La différence de phase $\Delta\phi$ acquise à la sortie de la lame est donc :

$$\Delta\phi = 2\,\pi\,h\,.\,\Delta n\,.\,\sigma_o \qquad (5)$$

où Δn désigne la différence entre indices ordinaire et extraordinaire, h l'épaisseur de cristal biréfringent traversée et σ_o le nombre d'ondes dans le vide. La transmission de la lame vaut donc :

$$T = \frac{1}{2}\,.\,\left(1 + \cos\,\frac{2\,\pi\,\sigma_o}{p}\right) \qquad (6)$$

avec :

$$p = \frac{1}{h\,.\,\Delta n} \qquad (7)$$

où p est l'I.S.L. de la lame, séparant deux longueurs d'onde pour lesquelles la transmission est maximale.

On utilise principalement deux types de cristaux biréfringents, le spath ($\Delta n = 0{,}16$) et le quartz ($\Delta n = 0{,}01$) ce qui donne respectivement, pour une lame de 1 cm d'épaisseur, des I.S.L. de 6 cm^{-1} et 100 cm^{-1}.

- Le prisme de verre : si l'on interpose un prisme sur le trajet du faisceau laser, entre un des miroirs et le barreau amplificateur, la condition géométrique de retour exact du faisceau sur lui-même n'est satisfaite que pour une certaine valeur de l'indice du prisme, donc, pour un verre de type donné, par une longueur d'onde bien précise. Avec cette seule sélection en longueur d'onde dans la cavité, la largeur spectrale de l'impulsion laser

en mode déclenché, de l'ordre de quelques cm^{-1}, varie en fonction de la dispersivité du verre. A la différence des autres méthodes de sélection, le prisme privilégie non pas une série de longueurs d'onde mais bien une longueur d'onde unique, l'indice ne pouvant évidemment reprendre exactement la même valeur que très loin au-delà de la bande de gain du verre dopé au Néodyme.

- L'interféromètre de Fabry-Pérot (/ 84 /) : on obtient sa transmission en sommant la série des amplitudes des réflexions successives sur les deux faces. Dans le cas de deux dioptres de réflectivités r égales, on obtient :

$$T = \frac{1}{1 + \frac{4\,r}{(1-n)^2} \cdot \sin^2 (2\,\pi\,nh\,\sigma_o)} \qquad (8)$$

où h est la distance entre les dioptres et n l'indice du milieu les séparant. On a donc une série de pics de transmission équidistants, l'I.S.L. étant de $(2\,nh)^{-1}$. On appelle "finesse du Fabry-Perot" le rapport F entre l'I.S.L. et la largeur à mi-hauteur d'un pic de transmission. Pour des valeurs de r pas trop faibles, la finesse est donnée par :

$$F = \frac{\pi \sqrt{r}}{1 - r} \qquad (9)$$

Pour un Fabry-Perot constitué simplement d'une lame de verre à faces parallèles sans traitements diélectriques, la réflectivité r s'écrit en fonction de l'indice :

$$r = \left(\frac{n - 1}{n + 1}\right)^2 \qquad (10)$$

d) Structure de la cavité multimode

La figure IV.3 montre le schéma optique de la cavité multimode utilisée. Cette cavité est délimitée par un miroir sphérique à réflexion totale, de rayon de courbure 5 m, et par un miroir de sortie plan traité à 65 % de réflexion. Elle comprend bien sûr le barreau de verre-Néodyme et une cuve à faces parallèles de quelques millimètres d'épaisseur contenant l'absorbant saturable B.D.N., placée à l'incidence de Brewster près du miroir

M1: Miroir R_{MAX}
Q: Cellule de déclenchement (B.D.N.)
C: Lame de spath
P: Prisme
D: Diaphragme Φ1.5mm
R: Barreau laser
M2: Miroir de sortie (R = 65%)

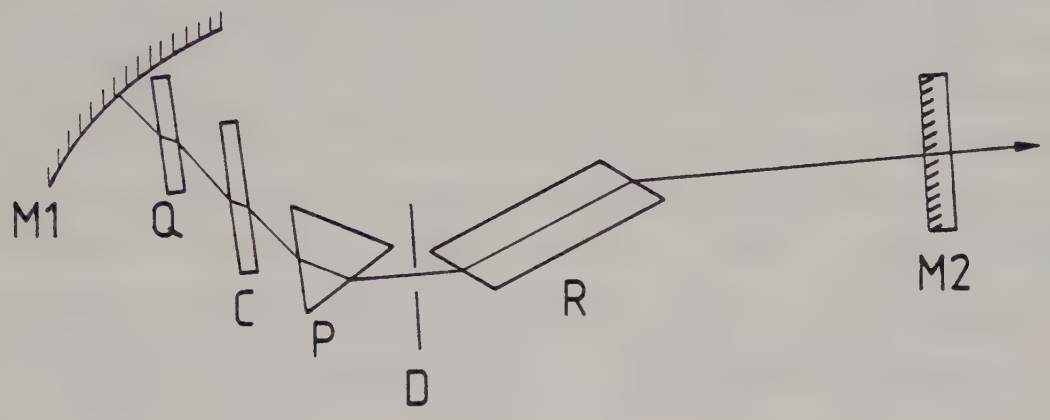


Figure IV.3 - Cavité laser multimode.

à réflexion totale. Il faut ensuite une sélection grossière en longueur d'onde, qui permette de choisir une région donnée de la bande de gain du barreau (≅ 100 Å). Les deux candidats possibles sont, pour des raisons d'I.S.L., la lame de quartz et le prisme de verre. Nous avons choisi ce dernier, des tests ayant montré que le spectre fourni par la cavité était alors plus "lisse" et plus reproductible. Néanmoins, au-delà d'une largeur laser de 0,2 cm^{-1} la forme de raie est plus difficile à contrôler. L'inconvénient de ce choix est d'interdire l'utilisation d'un faisceau laser visible (He-Ne) pour le réglage de la cavité. La largeur de spectre obtenue grâce au prisme est de 2 Å (environ 400 modes), ce qui est beaucoup trop pour une expérience de résonance. Il faut rajouter une lame de spath dont on détermine l'épaisseur selon la largeur de raie désirée, entre 0,08 et 0,15 Å. On accorde la longueur d'onde en tournant légèrement le miroir à réflexion totale (déplaçant ainsi le trajet optique dans le prisme) autour d'un axe vertical, et la lame de spath autour d'un axe normal à ses faces.

L'ensemble de l'oscillateur est contenu dans une enceinte stabilisée en température.

e) Structure de la cavité monomode

Rappelons que les modes de la cavité sont distants de 150 MHz. Pour obtenir des impulsions lasers monomodes, il faut donc rajouter dans la cavité multimode définie ci-dessus un élément de sélection capable de distinguer entre des modes très voisins en fréquence. Le seul moyen utilisable pour cela est la création d'une sous-cavité, ce que nous obtenons en plaçant entre le barreau laser et le miroir de sortie, au quart de la longueur optique de la cavité, une lame de verre E (n = 1,8373) de 10 mm d'épaisseur, les deux faces faisant un angle de 4 degrés, une des deux faces étant exactement normale à l'axe laser (figure IV.4). L'I.S.L. de la sous-cavité est donc de 600 MHz. La lame E est assujettie à une platine micrométrique permettant une translation continue le long de l'axe laser, l'ajustage de la valeur L/4 étant assez critique pour la stabilité en longueur d'onde.

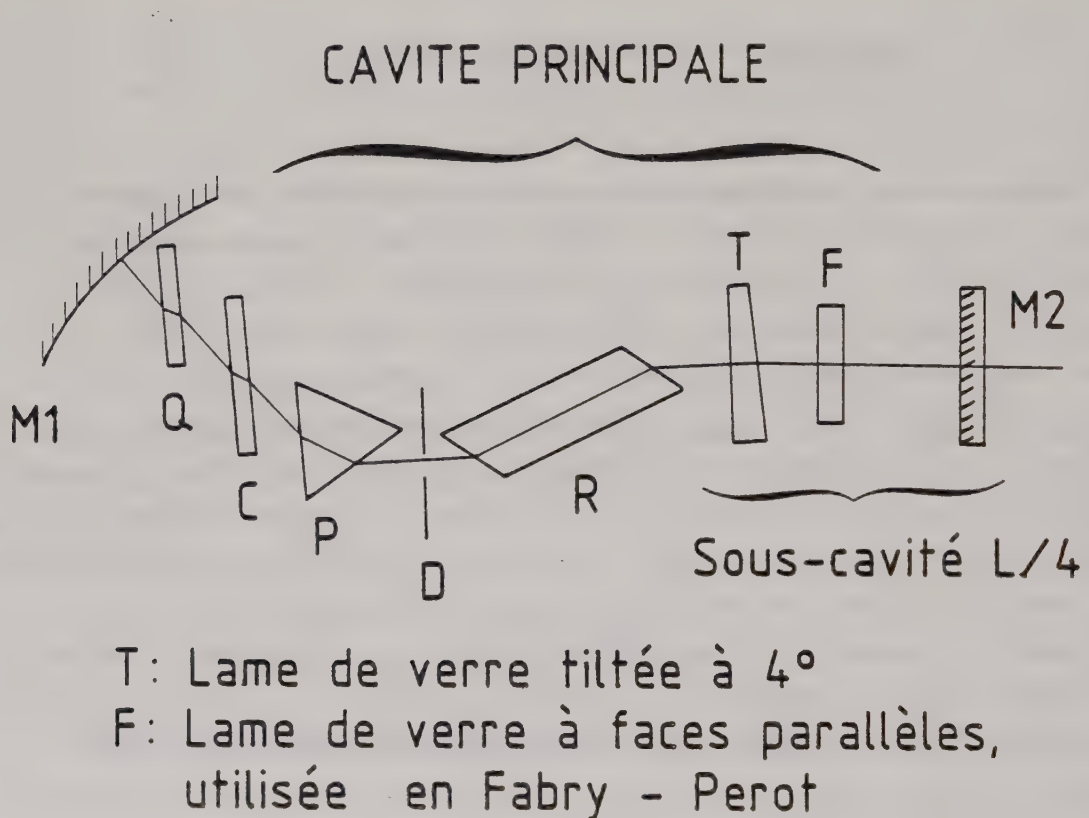


Figure IV.4 - Cavité laser monomode.

On peut remarquer qu'il était en principe possible de créer une sous-cavité de façon plus commode en utilisant simplement une lame à faces parallèles collimatée, munie d'un traitement anti-reflet sur l'une de ses faces. Malheureusement, l'expérience a montré qu'une telle lame placée dans la cavité s'y comporte partiellement comme un Fabry-Perot de même épaisseur, malgré le traitement anti-reflet (T > 99 %). Ce fait est incompatible avec l'idée selon laquelle le rapport des puissances de sortie de deux modes laser est donné approximativement par la formule :

$$\frac{P_2}{P_1} = \left(\frac{T_2}{T_1}\right)^N \qquad (11)$$

où P_2 et P_1 sont les puissances de sortie des deux modes, T_2 et T_1 les produits des transmissions des éléments rencontrés par la lumière pendant un aller-retour dans la cavité, et N le nombre d'aller-retours effectués durant l'impulsion. Des faits analogues se sont produits à plusieurs reprises au cours de la mise au point de l'oscillateur, un élément optique donnant une sélection en longueur d'onde beaucoup plus forte que celle indiquée par (11). Ceci confirme l'existence d'une phase préliminaire à l'impulsion, durant laquelle il y a déjà suffisamment de photons dans la cavité pour que les sélections jouent leur rôle sur un nombre d'aller-retours N beaucoup plus grand que celui calculé simplement à partir de la durée de l'impulsion géante. Une telle phase préliminaire est évidemment supprimée si l'on utilise une cellule de Pockels pour déclencher l'impulsion, ce qui expliquerait pourquoi il est beaucoup plus difficile d'obtenir un oscillateur monomode avec un déclenchement actif.

L'oscillateur monomode ainsi constitué présente encore deux défauts ; d'une part, il ne fournit que des longueurs d'onde discrètes espacées de 600 MHz (I.S.L. de la sous-cavité L/4) ; d'autre part, tous réglages constants, la longueur d'onde saute parfois d'un mode de la sous-cavité au voisin. On a remédié simultanément à ces deux défauts en plaçant à l'intérieur de la sous-cavité (figure IV.4) une lame de verre E à faces parallèles, non traitée, en incidence quasi-normale (c'est-à-dire non collimatée), d'épaisseur 10 mm.

En faisant varier légèrement l'inclinaison de cette lame, on obtient un défilement des modes de la sous-cavité suffisant pour faire

osciller successivement tous les modes de la cavité principale. D'autre part, l'inclinaison de la lame est assez faible pour qu'elle agisse comme un Fabry-Pérot d'I.S.L. 0,28 Å, dont les pics de transmission se déplacent avec l'incidence. On crée ainsi une sélection d'I.S.L. intermédiaire entre ceux de la sous-cavité (600 MHz) et ceux de la lame de spath (≅ 10 Å). La reproductibilité en longueur d'onde devient alors parfaitement satisfaisante.

Signalons enfin que les largeurs spectrales très faibles (0,03 à 0,05 cm^{-1}) en multimode ont pu être obtenues en utilisant de telles lames à faces parallèles, d'épaisseur variant entre 4 et 10 mm, mais en supprimant la sous-cavité pour revenir à un I.S.L. de 150 MHz.

IV.3 - AMPLIFICATION DU FAISCEAU LASER

Le pompage de l'oscillateur (id est la haute tension envoyée dans les lampes flash) est toujours réglé au voisinage immédiat du seuil, afin de donner une efficacité maximale à la cascade des sélections en fréquence. On utilise donc, pour faire varier l'éclairement laser sur les atomes de Césium, une amplification variable. Le faisceau laser sortant de l'oscillateur passe tout d'abord dans deux préamplificateurs QUANTEL munis de barreaux de 9 mm de diamètre ; il subit ensuite une épuration spatiale dans un système afocal constitué de deux lentilles de 150 et 465 mm de focale, un diaphragme de 0,3 mm de diamètre étant placé au foyer commun / 85 /. A la sortie de l'épurateur, le faisceau triplé en diamètre passe dans un troisième barreau amplificateur de 16 mm de diamètre, puis est focalisé dans la vapeur de Césium par une lentille cylindrique de focale 500 mm. L'utilisation d'une focalisation cylindrique résulte d'un compromis : une focalisation sphérique donnerait une répartition beaucoup plus inhomogène de l'éclairement dans le volume d'interaction, alors qu'une absence de focalisation risquerait, à même éclairement moyen, de saturer le système de détection des ions tout en exigeant une énergie laser beaucoup plus forte, donc une amplification moins propre du faisceau.

IV.4 - Enceinte d'interaction laser-Césium

L'enceinte d'interaction, représentée figure IV.5, et le système de détection des ions Cs^+ sont très semblables à ceux utilisés par l'équipe de Morellec pour les expériences analogues en lumière cohérente / 52 /. La vapeur de Césium est contenue dans une enceinte en verre Pyrex, maintenue à une température de quelques degrés supérieure à celle du réservoir de Césium liquide afin d'éviter la condensation sur les parois. La pression de vapeur saturante est de l'ordre de 6.10^{10} atomes par cm^3. Les ions créés par le tir laser sont accélérés par un champ électrostatique de 500 V/cm. Un spectromètre à temps de vol assure la séparation de la composante Cs_2^+, puis la détection est assurée par un multiplicateur d'électrons secondaires (M.E.S) 50 P3R de R.T.C. La captation des ions est limitée par un diaphragme circulaire de 3 mm de diamètre placé en face de la zone focale, afin d'obtenir un signal d'ions provenant d'une région la plus homogène possible en éclairement. La valeur de la section focale à mi-hauteur mesurée par les procédés photodensitométriques habituels / 52, 78 / est de $3,4.10^{-3}$ cm^2 ($\mp$ 10 %). Le nombre d'atomes présents dans le volume effectif d'interaction peut être estimé à 3.10^7.

IV.5 - Mesures des propriétés de la lumière laser

Les paramètres à mesurer sont (figure IV.6) :

a) l'énergie de l'impulsion.
b) le profil temporel de l'impulsion.
c) le spectre de Fourier de l'impulsion.
d) la distribution spatiale de l'énergie laser.

a) L'énergie de l'impulsion est mesurée par un joulemètre Gen-Tec ED-200 ; les fluctuations de l'énergie autour de sa valeur moyenne sont de $\mp$5 % en sortie du dernier amplificateur.

b) Le profil temporel de l'impulsion (figure IV.7) est obtenu grâce à une photodiode XA 1003 de Radiotechnique, de temps de montée 150 psec,

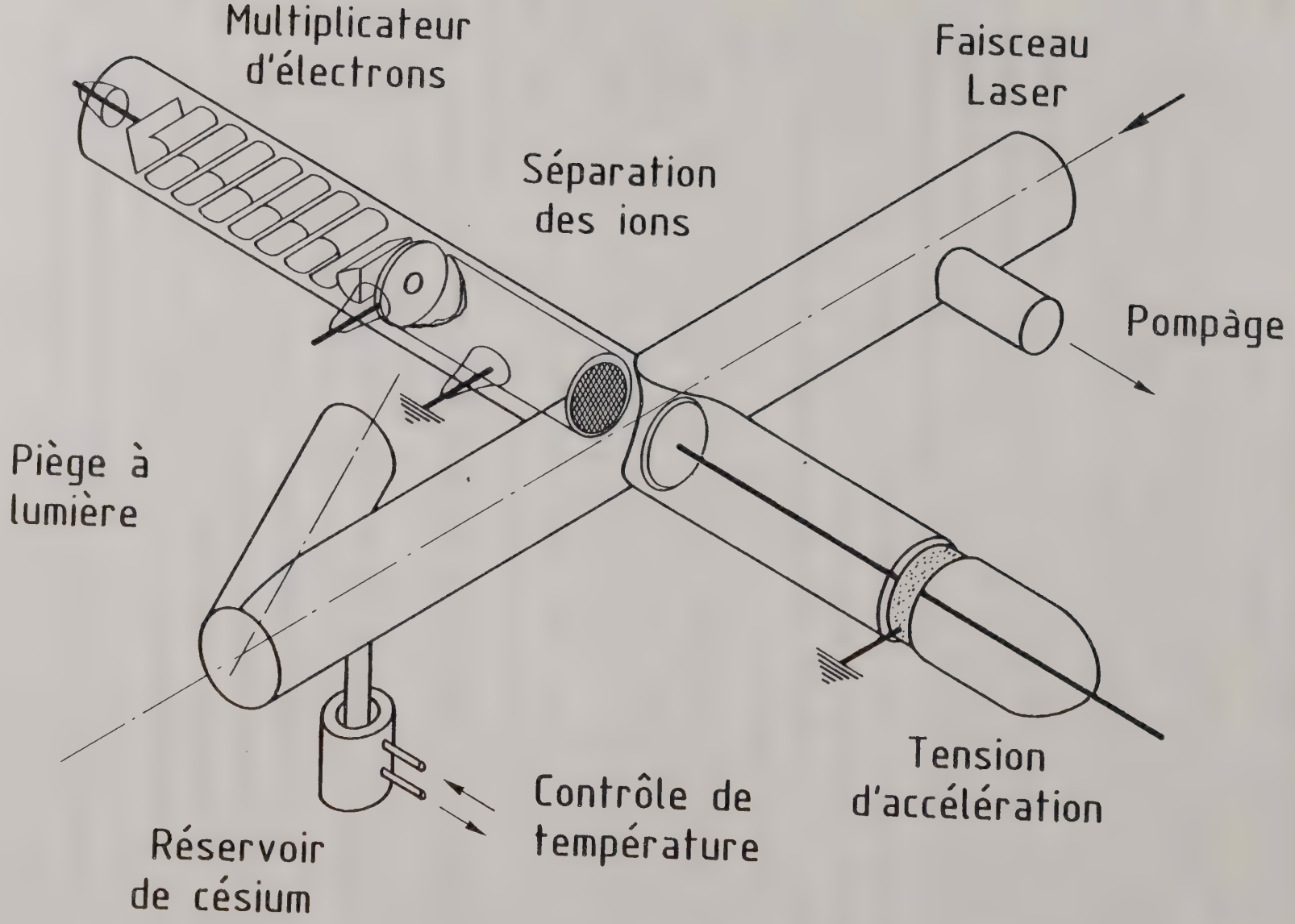


Figure IV.5 - Enceinte d'interaction à vapeur de Césium.

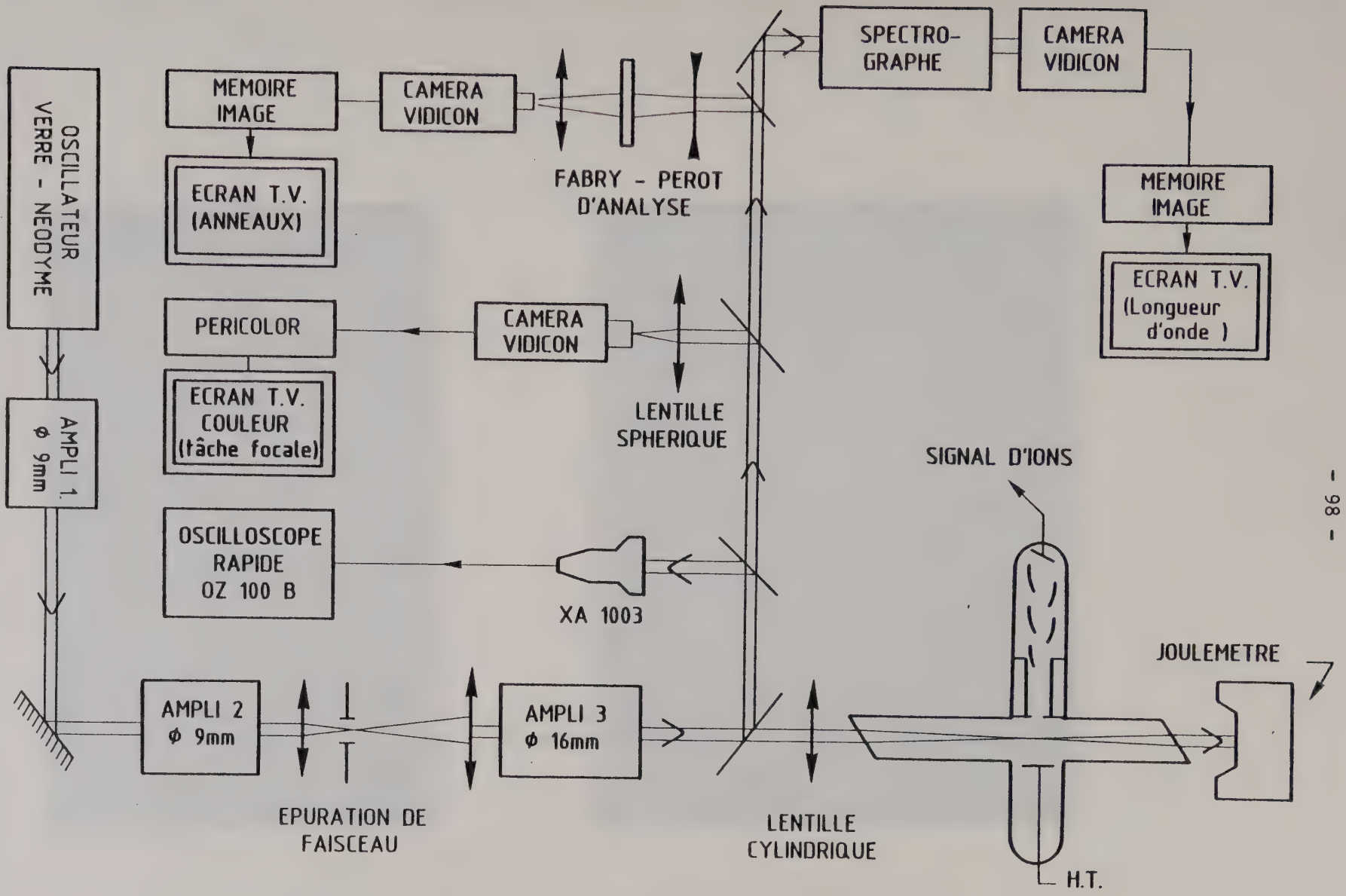
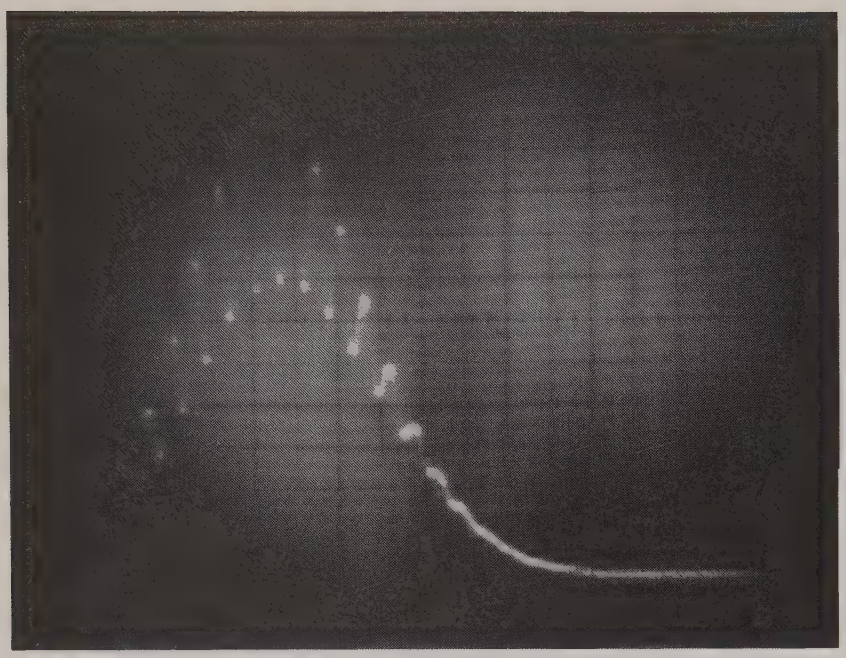


Figure IV.6 - Dispositif expérimental général.

a)



b)

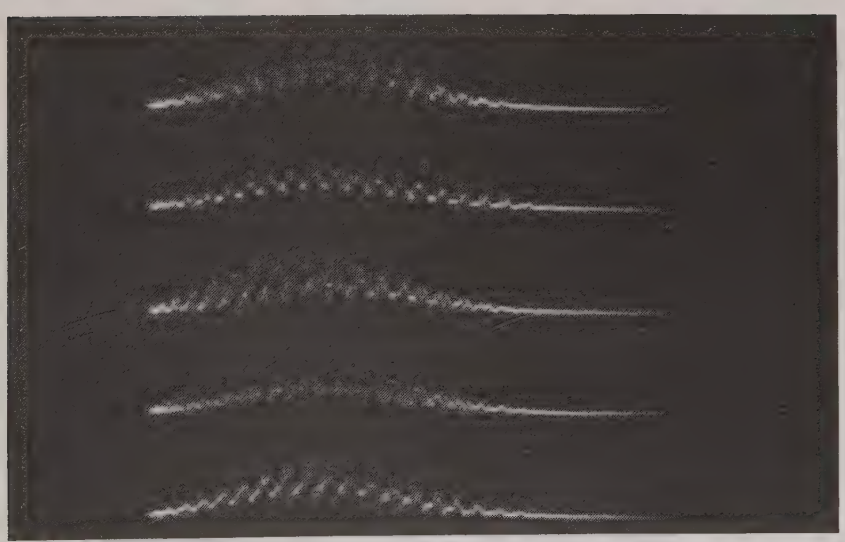


Figure IV.7 - Impulsions lasers multimodes (bande passante de l'oscilloscope) : (a) 150 MHz ; (b) 2 GHz.

connectée à un oscilloscope rapide OZ 100 B de bande passante 2 GHz. Toutefois, la mesure de la largeur temporelle à mi-hauteur de l'impulsion est faite par un oscilloscope Tektronix 7633 de bande passante 150 MHz, ce qui permet d'intégrer en partie les fluctuations rapides de l'éclairement dues aux battements entre modes longitudinaux. Nous avons fixé la durée L.T.M.H. de l'impulsion à 50 nsec durant les expériences. Les fluctuations de cette durée sont de $\mp$ 2 %.

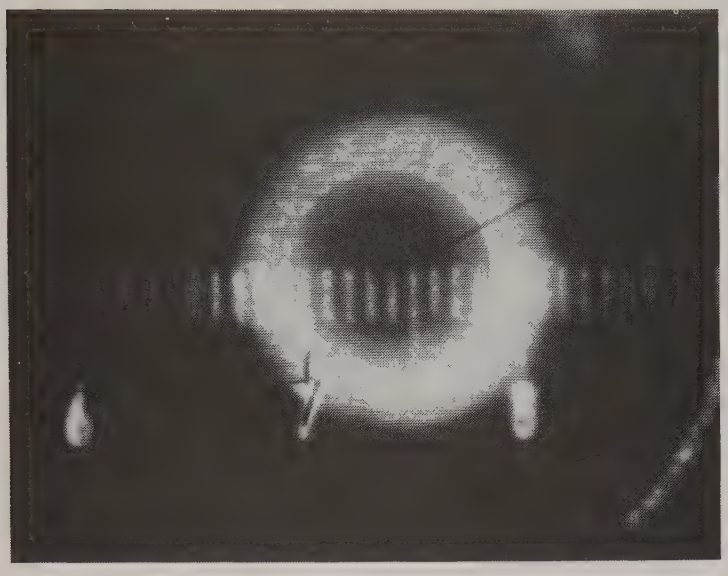
c) Les propriétés spectrales de l'impulsion sont déterminées grâce à un Fabry-Pérot d'analyse constitué d'une lame de verre à faces parallèles, stabilisée en température. L'I.S.L. est de 0,75 Å, les deux faces sont munies de couches diélectriques leur conférant un pouvoir réflecteur de 95 %, ce qui correspond à une finesse de 60. Une lentille convergente donne des anneaux à l'infini une image dans le plan de la surface photosensible d'une caméra vidicon à mosaïque de silicium (C.V.M.S.). Un dispositif à lame semi-réfléchissante permet de surimposer à l'image des anneaux celle d'un réticule. L'image ainsi formée est stockée dans une mémoire puis affichée sur un écran de télévision jusqu'au tir suivant (figure IV.8). On mesure le diamètre des anneaux à l'aide des graduations du réticule, qui permettent ainsi de s'affranchir d'une distorsion éventuelle du système vidéo. Le nombre d'ondes est relié au diamètre de l'anneau par la formule / 84 / :

$$\sigma - \sigma_o = \frac{p}{\phi_M^2} (\phi^2 - \phi_o^2) + kp \qquad (12)$$

où p désigne l'I.S.L., σ et ϕ le nombre d'ondes et le diamètre de l'anneau. ϕ_M est le diamètre maximal de l'anneau interne, σ_o et ϕ_o correspondent à une longueur d'onde prise comme référence au début de l'expérience. Le paramètre entier k est déterminé par une mesure grossière de la longueur d'onde donnée par un spectrographe de résolution 0,1 Å. La résolution totale est de 0,013 Å. L'erreur sur la mesure de la largeur spectrale peut être estimée à $\mp$ 15 %.

d) Les méthodes photodensitométriques, qui ont l'avantage de donner une valeur absolue pour la section focale ($3{,}4.10^{-3}$ cm^2) sont évidemment trop lentes pour permettre une surveillance permanente de la stabilité géométrique du faisceau laser d'un tir à l'autre. On utilise donc à cette fin un dispositif PERICOLOR basé sur une C.V.M.S. / 86 /. Une partie de la lumière laser,

a)



b)

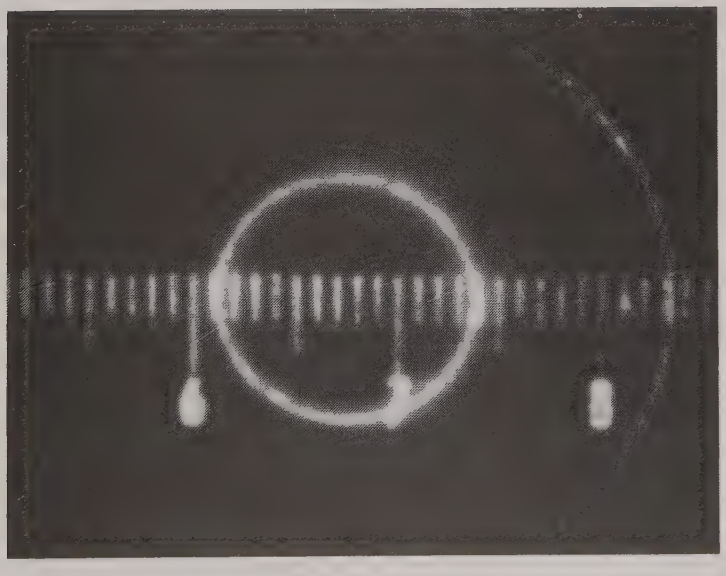
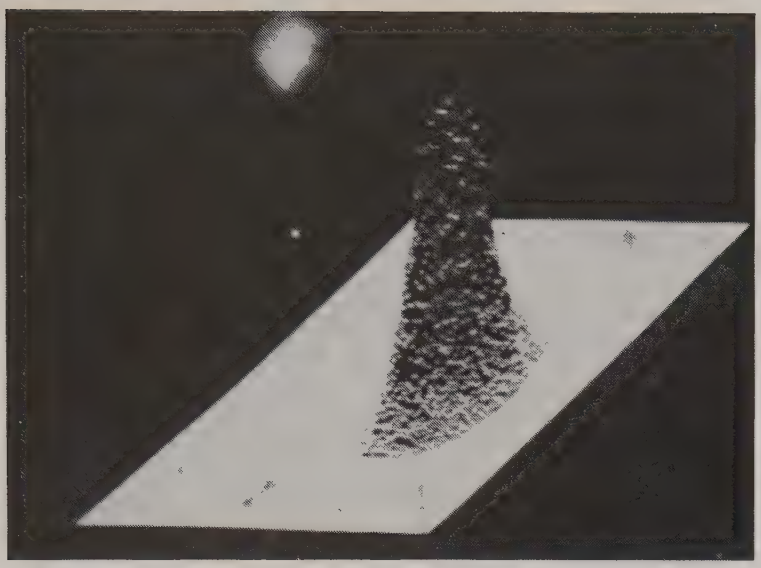
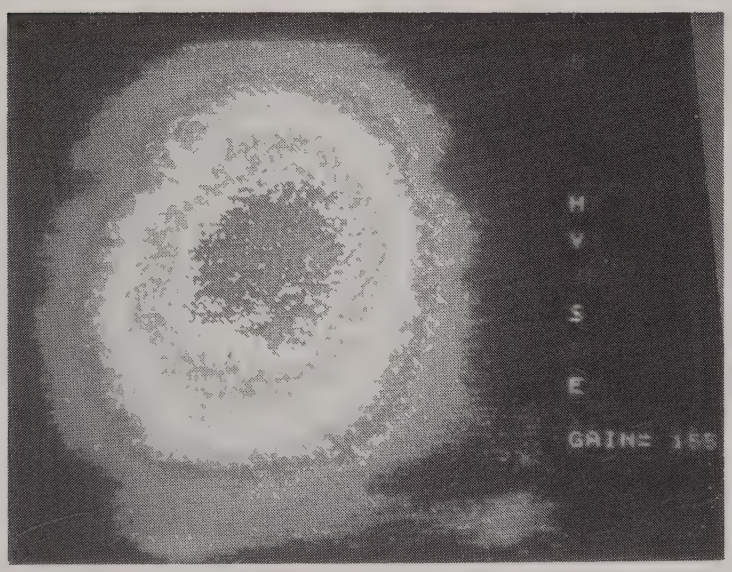


Figure IV.8 - Images vidéo des anneaux du Fabry-Perot d'analyse
a) $\gamma_L = 0{,}03\ cm^{-1}$; b) monomode.

prélevée à la sortie du dernier amplificateur, est focalisée au foyer d'une optique de microscope dont est munie la C.V.M.S. On est contraint d'utiliser une focalisation sphérique, la focalisation cylindrique fournissant malheureusement une image trop grande pour cette méthode. L'image de la zone focale donnée par la C.V.M.S. est, aussitôt après le tir, numérisée et stockée dans une mémoire vive à semiconducteurs de 64 Koctets. Cette mémoire est reliée à un système comprenant un microprocesseur 8080 et un écran de télévision couleur. Après chaque tir, un logiciel stocké en mémoire morte permet de calculer (en valeurs relatives) l'intégrale de l'éclairement dans la surface focale et la section focale, puis d'afficher successivement sur l'écran T.V. une image en "fausses couleurs" de la répartition de l'éclairement, puis une vue en perspective de cette répartition (figure IV.9). L'utilisation de ce dispositif a montré que les fluctuations de la section focale ainsi mesurées ne dépassent pas $\pm$ 5 % en présence du dispositif d'épuration spatiale, la variation de la valeur moyenne enregistrée lors du passage d'une cavité multimode à une cavité monomode étant inférieure à 5 %.



a) Vue en perspective de la répartition d'éclairement dans la zone focale.



b) Image en fausses couleurs de l'éclairement dans la zone focale.

Figure IV.9 - Système Péricolor pour l'étude de la répartition spatiale de l'éclairement au foyer.

CHAPITRE V

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les résultats bruts de l'expérience se présentent sous forme de séries de profils de résonance donnant, en fonction de la longueur d'onde, un signal proportionnel au nombre d'ions formés par le tir laser, fourni par le M.E.S. Deux autres paramètres expérimentaux contrôlables étant la largeur de raie γ_L et l'éclairement laser moyen I_1, on dispose donc de trois paramètres à faire varier indépendamment dans le domaine rendu accessible par le dispositif expérimental :

- l'éclairement peut varier entre 10^7 et 10^8 W/cm^2, les éclairements inférieurs ne donnant pas un nombre d'ions suffisant, les éclairements supérieurs amenant au contraire la saturation du détecteur M.E.S.

- la largeur de raie γ_L varie, pour la plupart des profils, entre 0,03 cm^{-1} (6 modes) et 0,15 cm^{-1} (30 modes). Il s'est avéré en effet qu'il était difficile de trouver un système de sélection de modes permettant de produire de façon suffisamment reproductible une lumière laser avec très peu de modes. Le domaine des largeurs de raie supérieures a été exploré jusqu'à 1,5 Å, mais il n'est pas possible d'y faire des mesures fines, notamment celle du décalage Stark effectif, et l'essentiel de notre effort a donc porté sur la gamme 6-30 modes.

- le désaccord en fréquence est limité, non pas par le système laser mais par la dynamique de détection. Nous ne nous sommes pas éloignés de la résonance de plus d'une fraction d'Å, distance à laquelle le signal d'ions tombe environ trois ordres de grandeur en-dessous de sa valeur maximale.

La synthèse des résultats est présentée ici sous forme d'une série de graphiques, accompagnés au fur et à mesure des considérations théoriques nécessaires. Précisons, afin d'éviter toute confusion, que si nos calculs ont utilisé le désaccord en énergie de la transition à 3 photons 6S-6F défini par $\Delta = 3\,\omega_1 - \omega_{10}$, il est plus naturel pour l'expérimentateur d'employer l'écart à la résonance du nombre d'ondes laser, soit $\Delta_a = \omega_1 - (\omega_{10}/3) = \Delta/3$; nous préciserons donc à chaque fois que ce sera nécessaire si une quantité est relative à un ou à trois photons.

V.1 - COMPORTEMENT HORS RÉSONANCE

Etant donné l'importance de la répartition spatiale de l'éclairement laser dans le volume d'interaction, dont l'indépendance par rapport aux autres paramètres conditionne largement la validité des résultats, il semblait logique d'utiliser tout d'abord le dispositif expérimental pour une expérience préliminaire d'ionisation non résonnante à 4 photons du Césium. En effet, si les précautions prises lors de la conception du système laser ont atteint leur but, une comparaison directe des signaux d'ions obtenus loin de la résonance avec les oscillateurs monomode et multimode doit donner les résultats suivants, d'après la théorie des perturbations :

- le signal d'ion est proportionnel à la quatrième puissance de l'éclairement,
- le quotient des signaux obtenus en multimode assez large et en monomode est de $4! = 24$.

Un désaccord avec ces prévisions ne pourrait guère s'expliquer que par une variation de la surface focale avec l'éclairement ou le nombre de modes. Le résultat de cette expérience préliminaire, effectuée avec un écart à la résonance $\Delta_a = 10\ cm^{-1}$ et une largeur laser $\gamma_L = 0{,}1\ cm^{-1}$, est donné par la figure V.1. Il est satisfaisant, puisqu'on retrouve bien un ordre de non-linéarité égal à 4 et un rapport de 25 ∓ 2 entre les deux courbes. Ce point établi, nous passons à l'étude de la résonance elle-même.

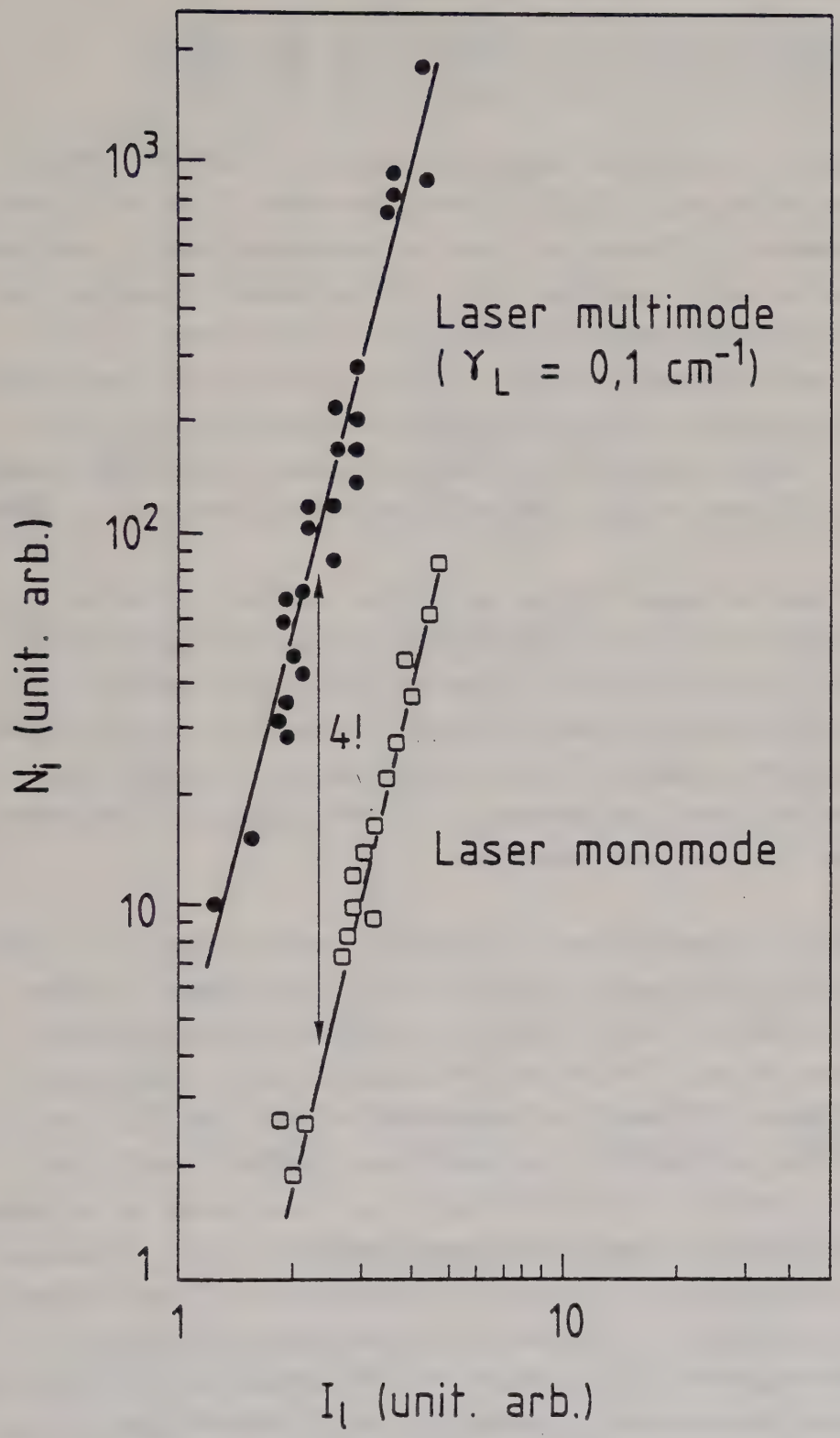


Figure V.1 - Nombre d'ions N_i créés en lumières monomode et multimode en fonction de l'éclairement laser I_l, à Δ_a = 10 cm^{-1} de la résonance 6S-6F.

V.2 - DÉPLACEMENT DES MAXIMA DES PROFILS DE RÉSONANCE

La figure V.2 montre une famille de profils de résonance obtenus avec un oscillateur multimode de faible largeur spectrale (0,03 cm^{-1}), pour différents éclairements. La flèche sur l'axe des abscisses donne la position du centre de symétrie de la transition 6S-6F, à éclairement évanescent. Les courbes données sont des moyennes : alors même que l'éclairement I_1 et la largeur laser γ_L sont maintenus constants, le signal obtenu est fonction des phases relatives des modes du laser, différentes à chaque tir. Ceci était attendu, puisque l'identification de la lumière multimode à un champ aléatoire gaussien ne vaut que comme moyenne d'ensemble. Nous reviendrons sur ce point.

On voit sur la figure V.2 que les courbes réalisées à faible éclairement présentent quatre pics correspondant aux quatre composantes de la résonance 6S-6F (cf. figure II.4), ce qui est tout à fait analogue aux profils réalisés avec notre oscillateur monomode (figure V.3). Au fur et à mesure que l'éclairement augmente, la structure fine (Δ_F = 0,1 cm^{-1} donc 0,033 cm^{-1} à 1 photon) n'est plus résolue, et on voit diminuer la profondeur du minimum séparant les deux pics hyperfins.

La figure V.2 comparée avec la figure V.3 montre aussi, et surtout, un décalage en fréquence des maxima croissant avec l'éclairement, de même sens mais plus important que pour les profils tracés en lumière monomode / 87 /. On a vu que ce point faisait l'objet de prévisions théoriques importantes. Pour mettre en évidence clairement le comportement du décalage Stark effectif, nous avons reporté sur la figure V.4 sa valeur pour plusieurs profils de résonance réalisés avec des valeurs différentes de l'éclairement et du nombre de modes. Le déplacement porté en ordonnée est exactement celui du minimum du signal d'ions correspondant au centre de symétrie du profil de résonance. C'est en effet cette longueur d'onde qui reste précisément définie le plus longtemps lorsqu'on augmente l'éclairement et/ou la largeur de raie. La disparition de ce minimum lorsque γ_L dépasse 0,15 cm^{-1} amène d'ailleurs une augmentation très importante de l'incertitude de mesure.

Le résultat global exprimé par la figure V.4 est le suivant : le passage en lumière multimode multiplie le décalage Stark effectif de la

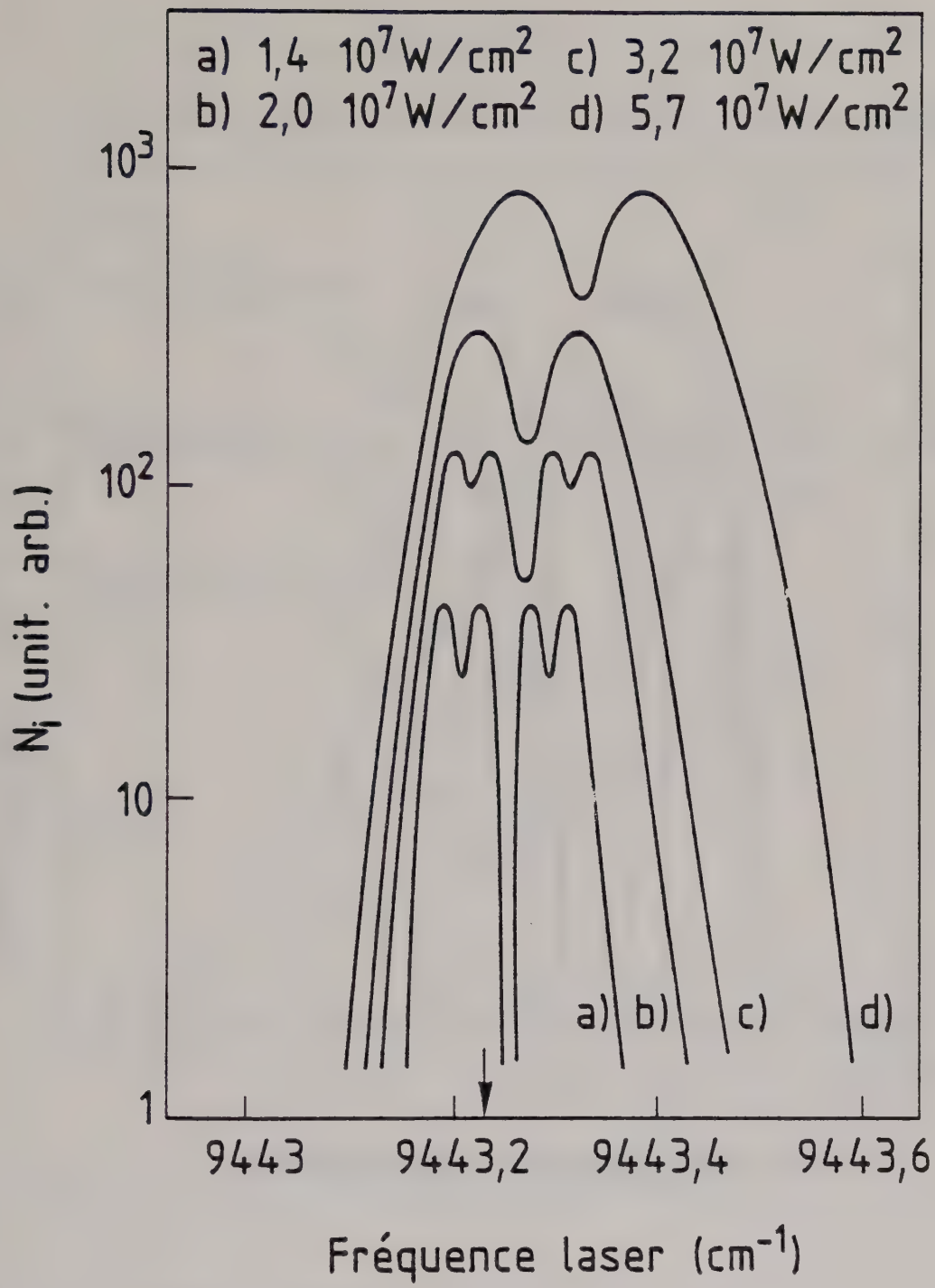


Figure V.2 - Nombre d'ions créés au voisinage de la résonance 6S-6F, en fonction de la fréquence, par un laser multimode de largeur $\gamma_L = 0,03\ cm^{-1}$ et pour différents éclairements.

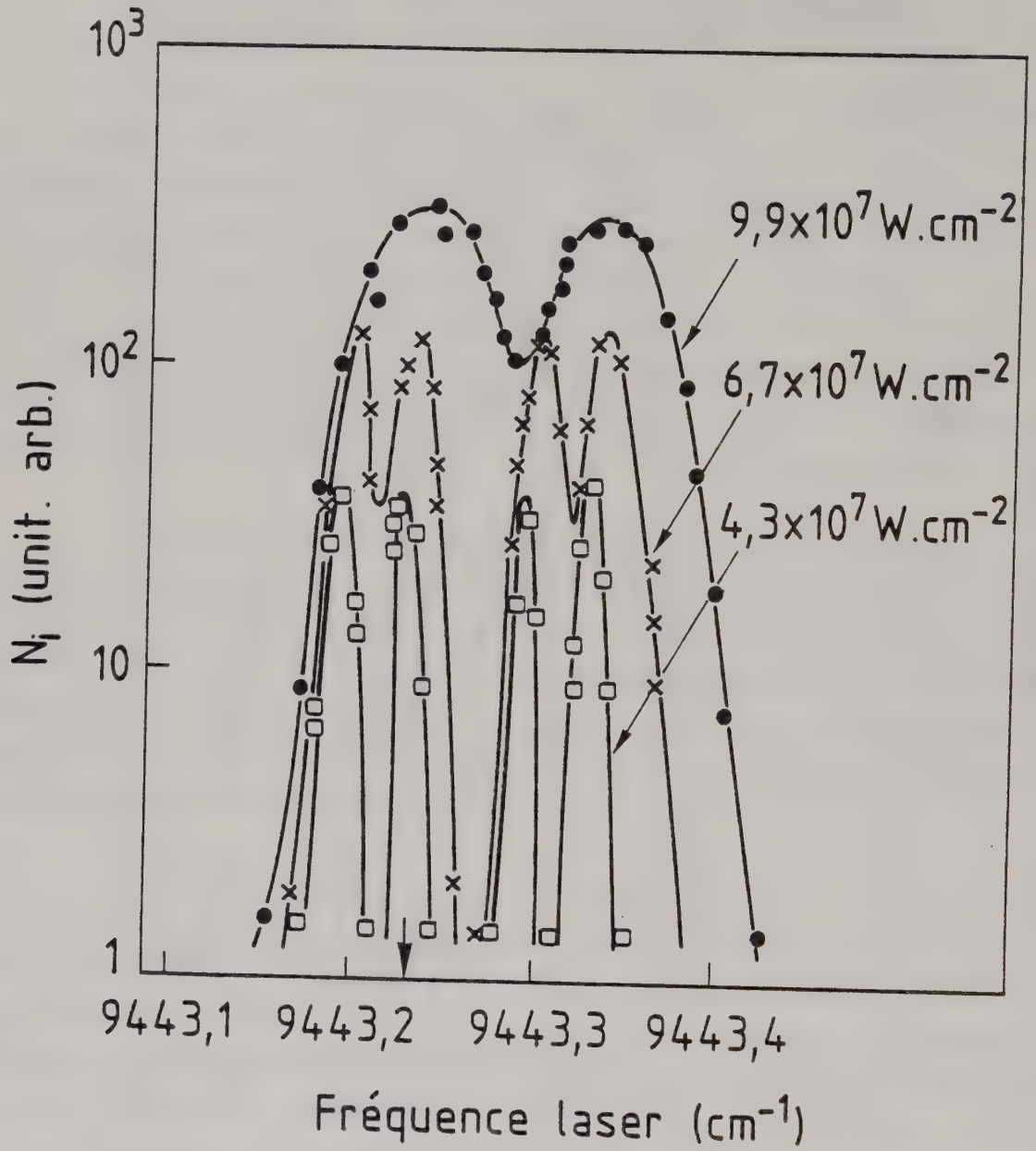


Figure V.3 - Nombre d'ions créés au voisinage de la résonance 6S-6F, en fonction de la fréquence laser, par un laser monomode et pour différents éclairements.

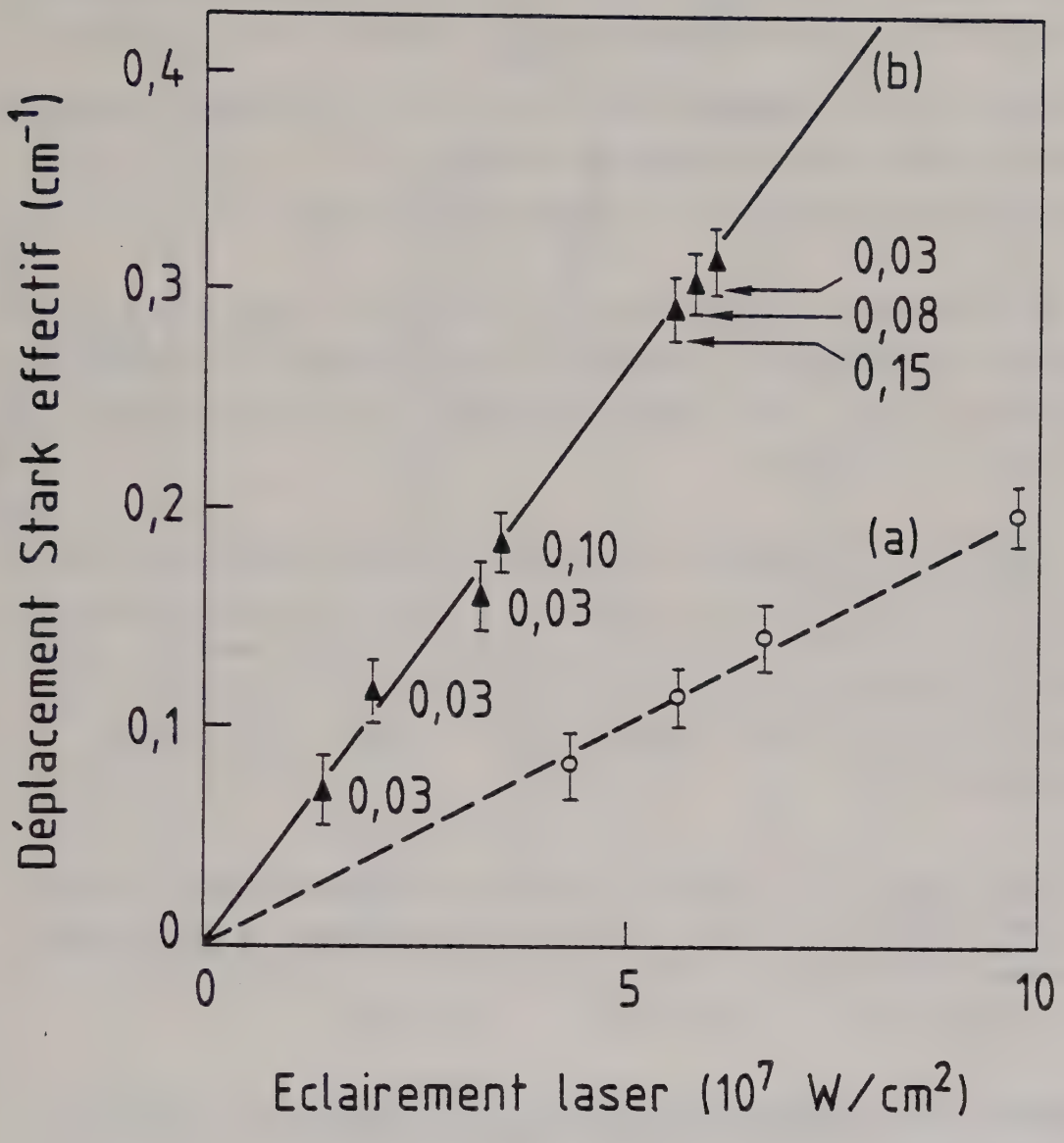


Figure V.4 - Décalage du maximum des profils de résonance en fonction de l'éclairement ; (a) lumière monomode ; (b) lumière multimode ; la largeur de raie laser utilisée est indiquée en cm^{-1} à côté de chaque barre d'erreur / 72, 87 /.

résonance par $R_\alpha = 2,8 \pm 0,2$ (5,6 $cm^{-1}/GW.cm^{-2}$ au lieu de 2 $cm^{-1}/GW.cm^{-2}$ en monomode, à 3 photons). Ce facteur d'accroissement R_α est largement indépendant de la largeur de raie tant que celle-ci reste inférieure à 0,15 cm^{-1}. On a vu au Chapitre III que les prévisions de la théorie pour R étaient :

- en bande nulle, $R = 3$ (équation (III.41)) si $\alpha >> \gamma$, une valeur légèrement inférieure à 3 si γ n'est pas négligeable devant α ;
- en bande large (modèle C.G.L.) $R_\alpha = 4$ (équation (III.55)).

On aurait donc pu s'attendre à une croissance continue de R_α de 3 vers 4 au fur et à mesure de l'augmentation de la largeur de raie, puisqu'une valeur de 0,15 cm^{-1} est supérieure ou égale à tous les couplages atomiques (équation (III.29)).

Toutefois, on ne dispose pas de renseignements quantitatifs sur la vitesse de croissance de R_α avec γ_L, du moins si on se limite aux formules analytiques du Chapitre III. Il faut donc, pour en obtenir, mener un calcul en employant la méthode décrite par les équations (III.58) et (III.60). Une comparaison avec un tel calcul, communiqué par P. ZOLLER, sera menée au chapitre suivant.

Ainsi donc, on a pu mettre en évidence expérimentalement un décalage de la résonance dû à la seule cohérence du rayonnement, à éclairement moyen constant.

V.3 - COMPARAISON DIRECTE ENTRE PROFILS DE RÉSONANCE MONOMODE ET MULTIMODE

Il est très utile de comparer sur une même figure les profils obtenus à même éclairement pour les deux types de lumière. Cette comparaison est donné par la figure V.5, où le profil multimode correspond à une largeur de raie de 0,03 cm^{-1}, l'éclairement commun étant de $5,7.10^7$ W/cm^2. On voit directement sur cette figure le décalage de la résonance dû à la cohérence de la lumière laser. Mais l'examen de cette figure appelle deux autres remarques très importantes :

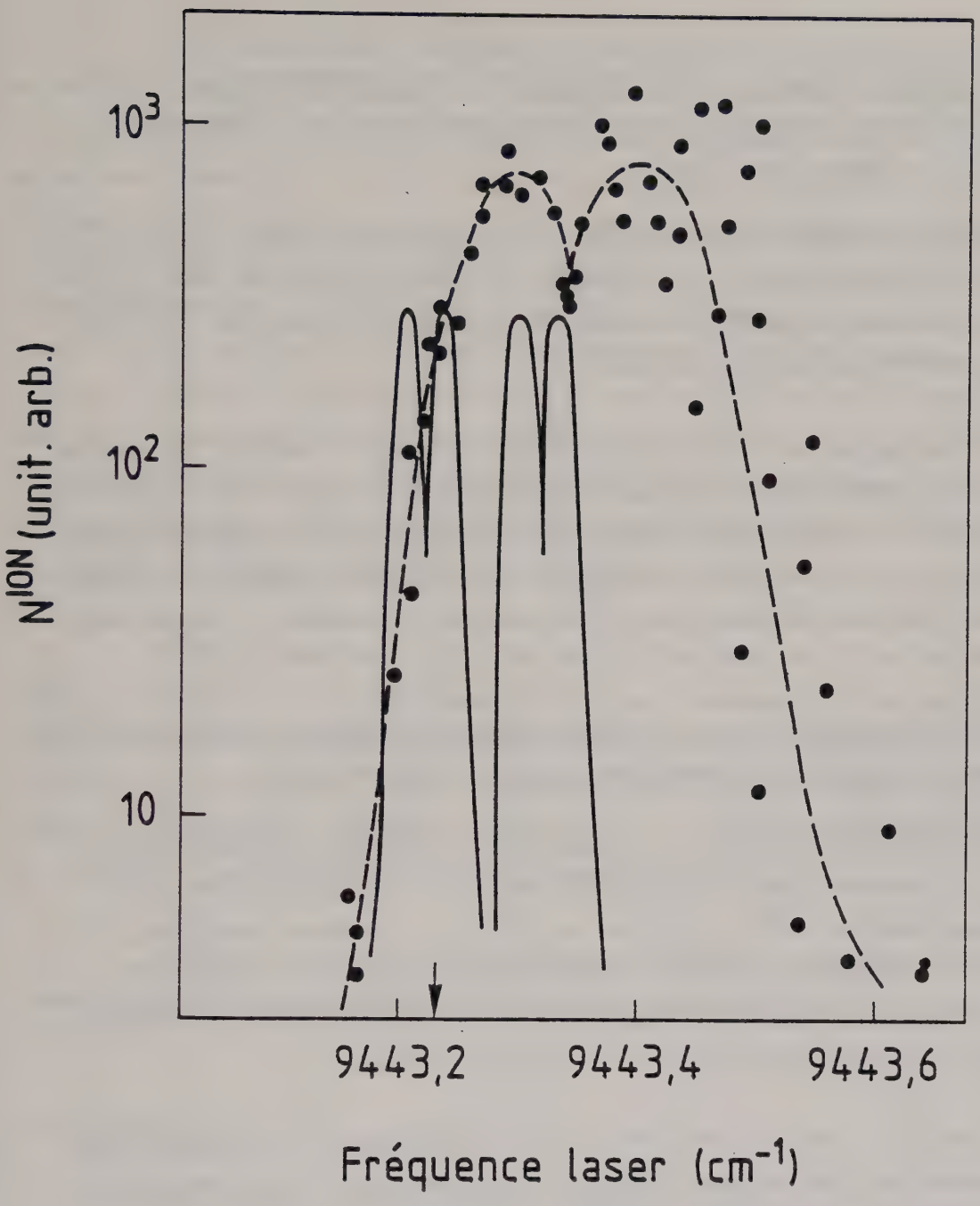


Figure V.5 - Deux profils de résonance en lumière monomode (trait plein) et en lumière multimode de largeur γ_L = 0,03 cm^{-1} (en pointillé) ; éclairement : 5,7.10^7 W/cm^2 ; les points expérimentaux sont ceux du profil multimode.

- les fluctuations du signal d'ions sont tout à fait asymétriques, le flanc de la résonance correspondant aux faibles longueurs d'onde donnant des fluctuations beaucoup plus fortes ;

- le profil de résonance est élargi par le passage en multimode. De plus, le signal d'ions au maximum de la résonance est multiplié par environ 2,5 par rapport au maximum du profil monomode. Nous notons h ce facteur d'efficacité relative des deux types de lumière.

C'est également du côté des faibles longueurs d'onde qu'on obtient en monomode des ordres de non-linéarité effectifs très élevés (cf. Chapitre II, figure II.6) ; nous pouvons donner une justification de l'asymétrie des fluctuations de façon analogue. On sait que l'éclairement donné par un laser multimode en fonction du temps peut s'exprimer par le produit de deux fonctions :

- une enveloppe temporelle lisse, de forme approximativement gaussienne, de largeur à mi-hauteur 50 nsec dans notre cas, notée G(t) ;

- une fonction variant beaucoup plus rapidement, avec un temps caractéristique γ_L^{-1}, possédant une période correspondant au temps d'aller-retour des photons dans la cavité, et qu'on note i(t) ; le comportement de i(t) au cours d'une période n'est pas reproductible d'un tir à l'autre (cf. figure IV.7.b), et est déterminé par les phases relatives des différents modes participant à l'impulsion.

Donc, à I_1 et γ_L fixés, une impulsion multimode peut donner lieu à des surintensités instantanées plus ou moins fortes selon le comportement de la fonction i(t). Mais du côté des grandes longueurs d'onde, une valeur très forte de l'éclairement instantanée coïncide nécessairement avec un éloignement du système de la résonance dynamique, d'après les considérations développées plus haut (Chapitre II.2) à l'aide du modèle de l'atome habillé. Ceci diminue naturellement l'effet sur le signal d'ions des variations d'un tir à l'autre des surintensités. La situation est tout à fait inversée du côté des courtes longueurs d'onde, où une surintensité plus forte peut simultanément amener le système à la résonance dynamique et augmenter le taux d'ionisation du niveau 6F et la fréquence de Rabi à trois photons, produisant ainsi un signal d'ions très important.

Pour obtenir une confirmation théorique de ce point particulier, on est contraint de recourir à la technique de simulation numérique décrite à la fin du Chapitre III. Nous avons mené un tel calcul avec les paramètres atomiques donnés dans la référence / 66 / (équation (III.29)), sans prendre en compte les structures fine et hyperfine de la résonance. L'impulsion laser simulée correspond à un éclairement moyen de 5.10^7 W/cm^2, un I.S.L. de 150 MHz (cas expérimental), l'enveloppe du spectre ayant une forme gaussienne de largeur L.T.M.H. 0,03 cm^{-1}. La figure V.6 montre les résultats obtenus pour $\alpha = 2$ cm^{-1}/GW.cm^{-2} (cas expérimental) et pour $\alpha = 0$. On voit effectivement que le "débranchement" artificiel du coefficient Stark stabilise le signal d'ions, alors que la prise en compte du vrai coefficient donne lieu à des fluctuations importantes, qualitativement semblables à celles montrées par le profil de résonance expérimental de la figure V.5.

Passons maintenant au problème de l'efficacité relative des deux types de lumière. Si l'éloignement du pic de résonance lors du passage en multimode était bien prévu par la théorie, par contre le facteur h = 2,5 sur le signal d'ions maximal semble fortement contredire les prédictions du modèle en bande nulle (Chapitre III.4 et / 71 /). Ce facteur dépend peu de la largeur de raie laser dans notre gamme 0,03 - 0,15 cm^{-1}.

D'après la Table III.1, dont les formules sont basées sur l'approximation à un taux, la valeur attendue pour h est donnée par :

$$h = 2{,}11\ \gamma/\alpha \qquad (1)$$

ce qui donne :

- h = 0,04 pour les paramètres atomiques de la réf. / 53 /
- h = 0,47 pour les paramètres atomiques de la réf. / 66 / (2)

Cependant, il faut remarquer que la surface du profil de résonance est beaucoup plus grande en multimode qu'en monomode et que le dépassement du profil multimode par le profil monomode n'est prévu par la théorie que sur une très faible gamme de longueurs d'onde, de l'ordre de $\gamma\ |\mathcal{E}_o|^2$, alors que la largeur L.T.M.H. du profil multimode est d'environ $4\ \alpha\ |\mathcal{E}_o|^2$ (figure III.4). Il en résulte qu'une utilisation du modèle en bande nulle pour le calcul de h doit logiquement prendre en compte les causes d'élargissement

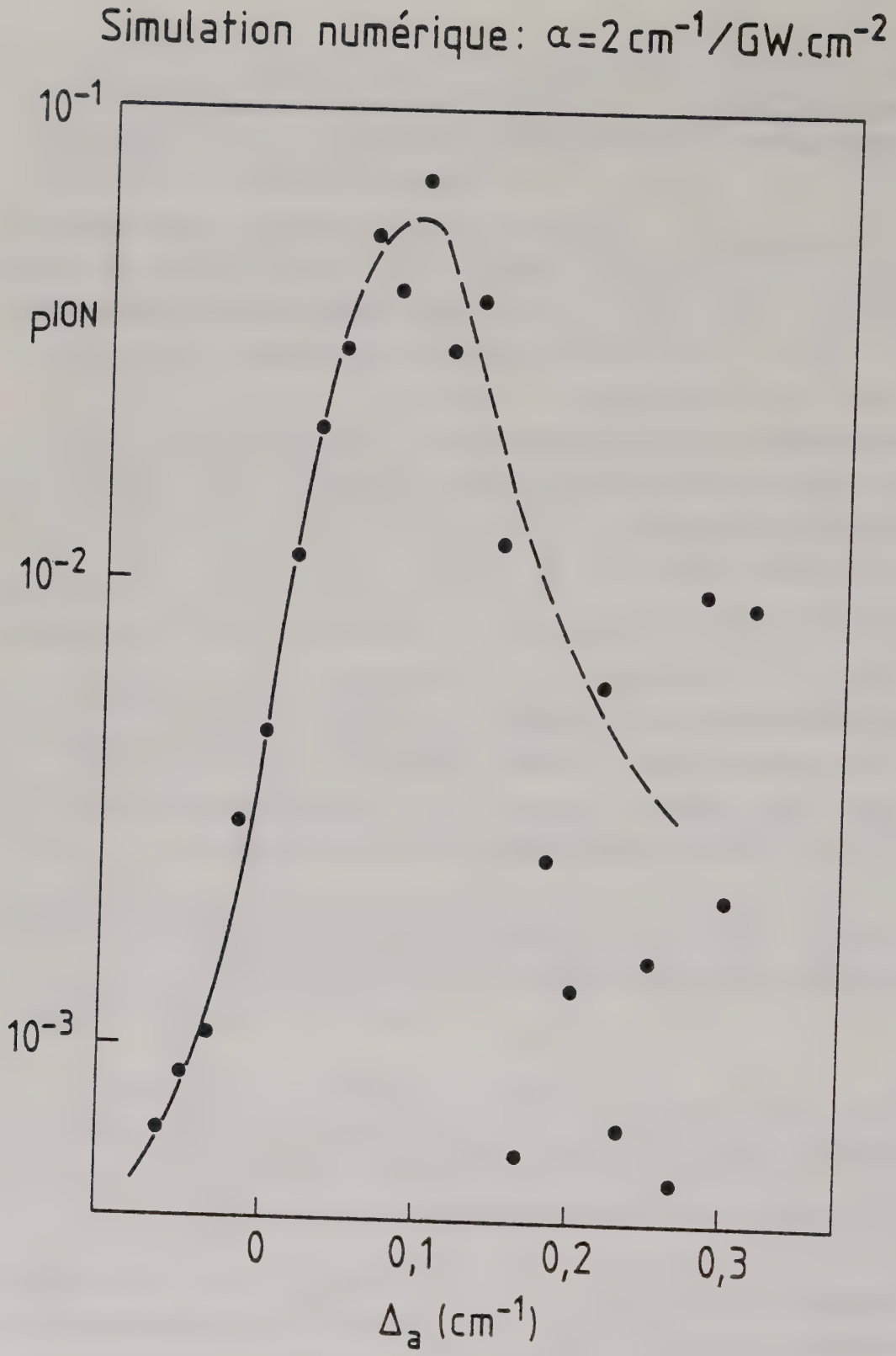


Figure V.6.a - Calcul de la probabilité d'ionisation en fonction du désaccord Δ_a pour un laser multimode simulé avec γ_L = 0,03 cm^{-1}, I_1 = 5.10^7 W/cm^2 et α = 2 $cm^{-1}/GW.cm^{-2}$; paramètres atomiques de la référence / 66 /.

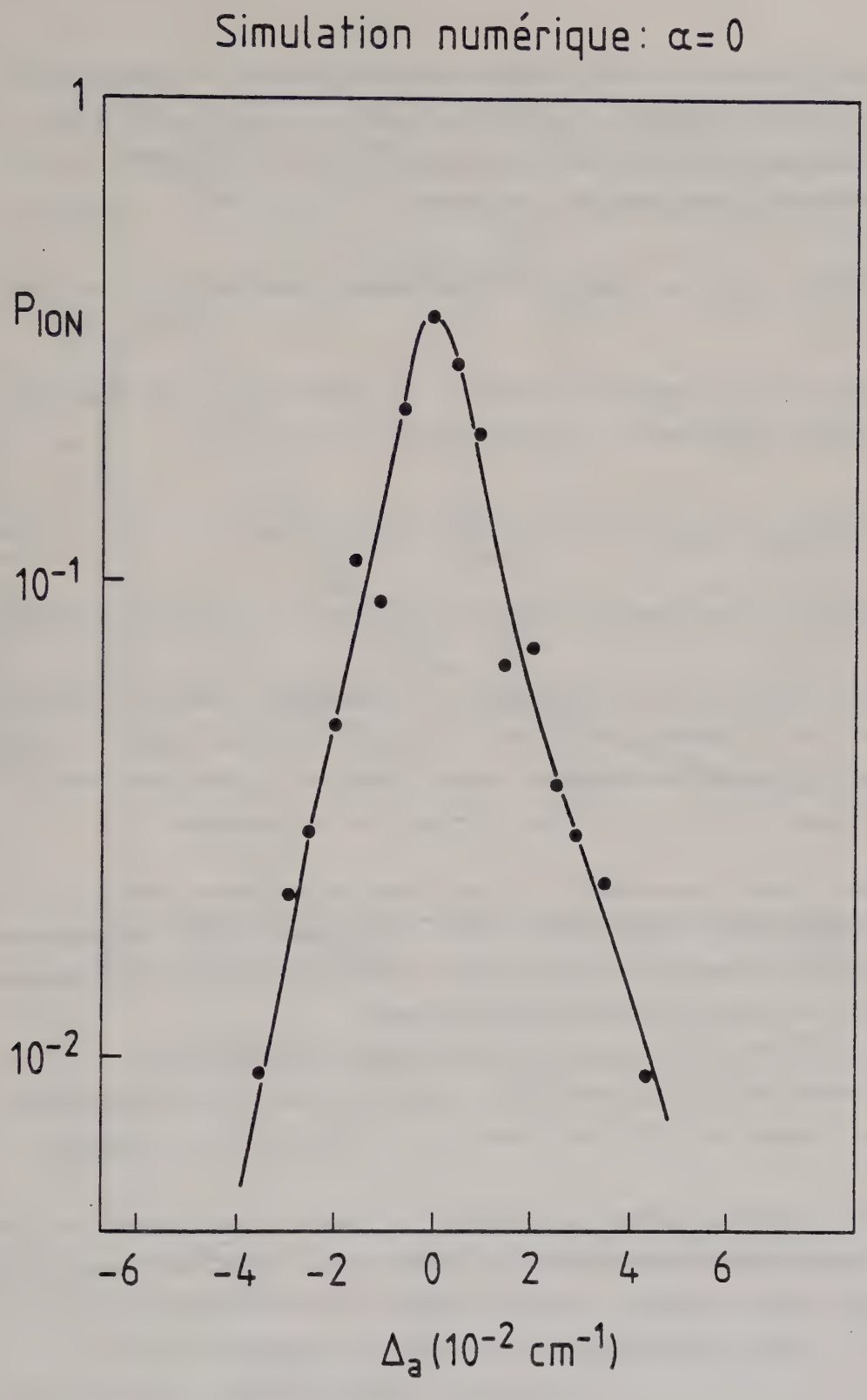


Figure V.6.b - Calcul de la probabilité d'ionisation en fonction du désaccord Δ_a pour un laser multimode simulé ; paramètres identiques à ceux de la figure V.6.a, sauf $\alpha = 0$; on voit que les fluctuations de P^{ION} ont pratiquement disparu.

expérimentales si celles-ci sont du même ordre de grandeur ou supérieures à $\gamma\ |\mathcal{E}_o|^2$, la largeur théorique du profil monomode, qui correspond à des valeurs à 1 photon de $0{,}75.10^{-2}$ cm^{-1} ou $6{,}3.10^{-4}$ cm^{-1} à 5.10^7 W/cm^2, selon le jeu de paramètres atomiques pris en compte (/ 53 /, / 66 /).

Examinons donc les causes d'élargissement expérimentales en monomode :

- l'effet Doppler sur la transition 6S-6F ; les désaccords Δ sont répartis selon une courbe gaussienne $G(\Delta)$ de largeur L.T.M.H. $\Delta\nu_D$:

$$\Delta\nu_D = (E_{6F} - E_{6S}) \left(8 \log (2) \frac{kT}{Mc^2}\right)^{1/2} = 0{,}03 \text{ cm}^{-1} \qquad (3)$$

ce qui correspond à une largeur Doppler de 10^{-2} cm^{-1} à 1 photon (à 300°K).

- l'éclairement dans la zone d'interaction est inhomogène, malgré les précautions prises pour minimiser cet effet. A cause du décalage Stark, la longueur d'onde de résonance dynamique ne sera donc pas la même pour tous les atomes du volume focal. Cet effet est linéaire en éclairement.

- l'éclairement "moyen instantané" G(t) est fonction du temps. Donc, à différents moments de l'impulsion, un atome donné peut entrer en résonance dynamique pour différentes longueurs d'onde laser. Cet effet, très analogue au précédent, est aussi linéaire en éclairement.

On verra expérimentalement que la contribution de ces deux derniers effets est de l'ordre de 2.10^{-2} cm^{-1} pour $I_1 = 5.10^7$ W/cm^2 (à 1 photon).

Etant donné ces ordres de grandeur, il faut nécessairement inclure les élargissements expérimentaux dans le calcul de h, ce qui implique un volume de calcul très important. Qualitativement, on peut concevoir que si le signal d'ion monomode expérimental est obtenu en gros en moyennant la courbe théorique sur une certaine gamme de fréquences laser, le fait que la surface du profil multimode soit six fois plus grande peut permettre à ce profil de rester au-dessus du monomode, expliquant ainsi une valeur h > 1.

Examinons maintenant le comportement du facteur h en fonction de la largeur de raie laser γ_L. Ce comportement est résumé par la figure V.7 ;

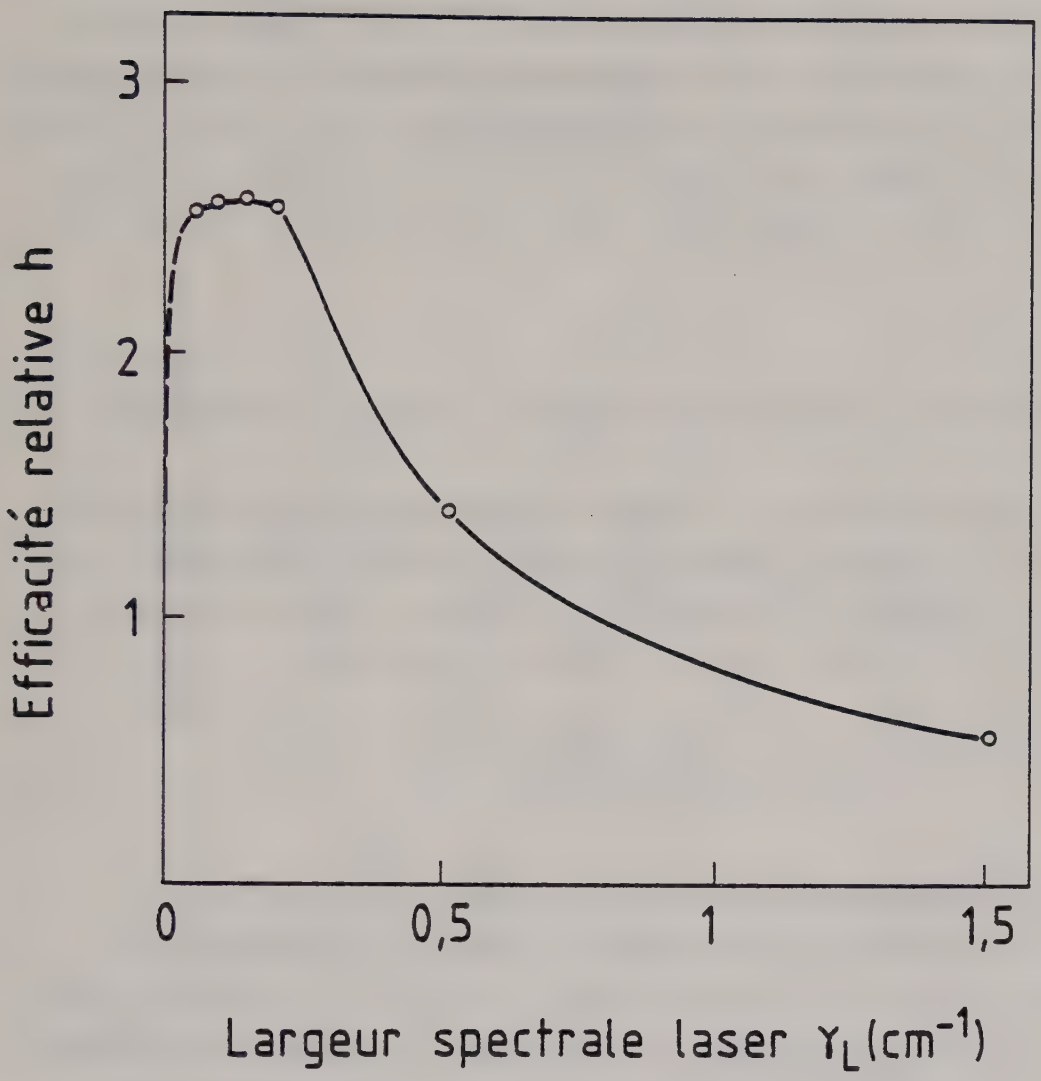


Figure V.7 - Quotient h des nombres d'ions obtenus à même éclairement en lumière multimode de largeur γ_L et en lumière monomode, aux maxima des profils de résonance respectifs ; $I_1 = 5{,}6.10^7$ W/cm^2 / 72 /.

il existe donc une largeur laser optimale pour le signal d'ions, située vers 0,1 cm^{-1}. La valeur de h passe rapidement de 1 à 2,5 lorsque le nombre de modes passe de 1 à 6, puis se stabilise jusqu'à 0,2 cm^{-1}, valeur à partir de laquelle elle entame une lente décroissance. La lumière multimode devient moins efficace que la lumière monomode à partir de 0,8 cm^{-1} environ. Ce dernier point, intuitivement satisfaisant, concorde avec la théorie en large bande qui prévoit que le signal d'ions tend vers 0 lorsque γ_L devient très grand.

V.4 - ORDRE DE NON-LINÉARITÉ DU SIGNAL D'IONS À LA RÉSONANCE

La valeur absolue de la probabilité d'ionisation étant difficilement accessible, un point de comparaison possible entre l'expérience et la théorie est la dépendance par rapport à l'éclairement I_1 de la hauteur du profil de résonance. Rappelons qu'on définit la pente K_M par :

$$K_M = \frac{\partial \text{ Log } (P_{MAX}^{ION})}{\partial \text{ Log } (I_1)} \qquad (4)$$

Cette dépendance est donnée par la figure V.8, dans la gamme 10^7-10^8 W/cm^2. La courbe (a) correspond à la lumière laser monomode, la courbe (b) à la lumière multimode de largeur γ_L = 0,1 cm^{-1}. La pente K_M vaut environ 2,5 aux faibles éclairements, et redescend à 2 pour les éclairements plus forts (5.10^7 à 10^8 W/cm^2). Nous rappelons les prévisions théoriques relatives à K_M dans le cadre de l'approximation à un taux, résumées par les formules (III.38, 41, 55) et la Table III.1 :

- pour la lumière monomode : $K_M = 2$ $(\Delta = \alpha \, |\epsilon_o|^2)$
- pour la lumière multimode, en bande nulle (C.G.M.) : $K_M = 2$ $(\Delta = 3 \, \alpha \, |\epsilon_o|^2)$
- pour la lumière multimode, en bande large (C.G.L.) : $K_M = 3$ $(\Delta = 4 \, \alpha \, |\epsilon_o|^2)$.

Nos valeurs expérimentales nous plaçant dans une position intermédiaire entre les cas de bande large et de bande nulle, on pouvait donc s'attendre à priori à des valeurs intermédiaires entre 2 et 3. Les pentes

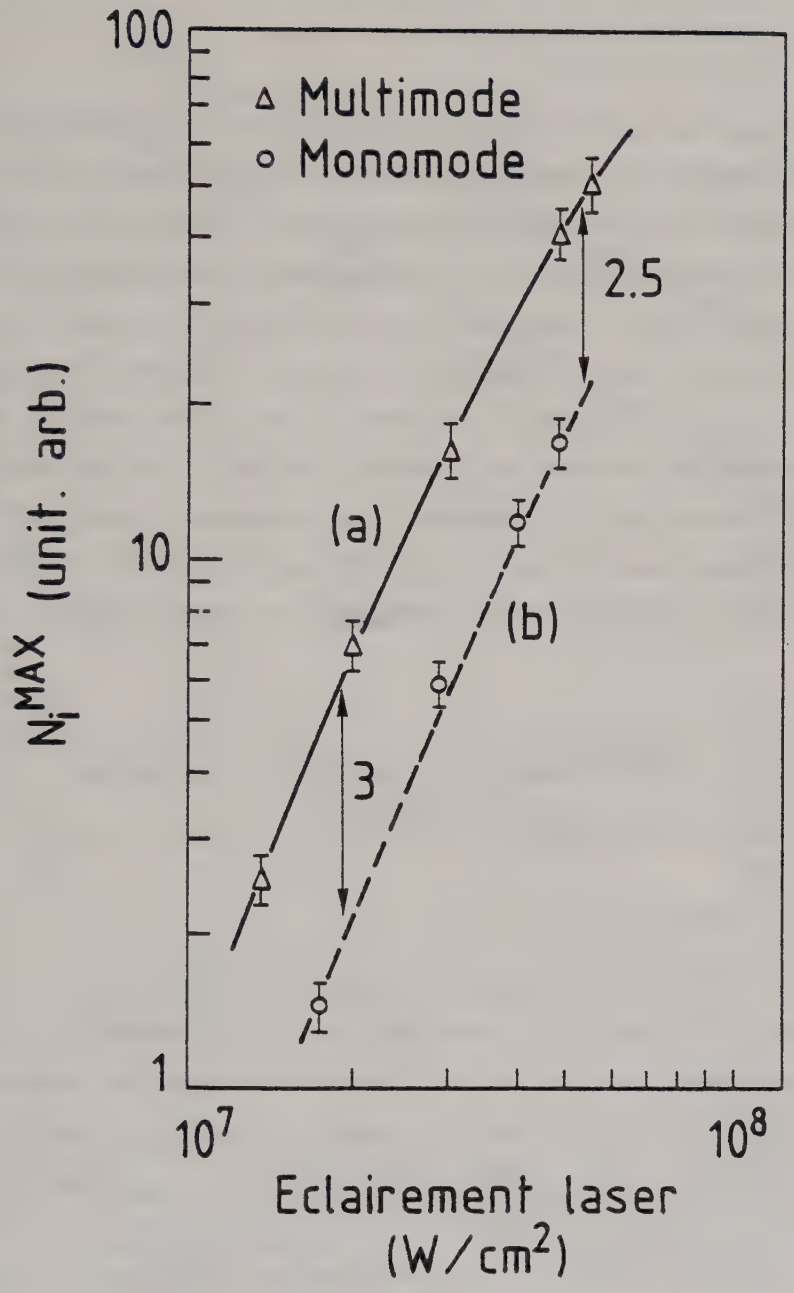


Figure V.8 - Nombre d'ions créés aux maxima des profils de résonance, en fonction de l'éclairement I_1 ; (a) lumière multimode, avec $\gamma_L = 0,1\ cm^{-1}$; (b) lumière monomode.

les plus fortes devaient logiquement se situer à faible éclairement, où l'on est plus proche des conditions de bande large puisque les couplages atomiques sont plus faibles.

Mentionnons que le fait de trouver des pentes K supérieures à 2 pour les faibles éclairements en lumière monomode ne suffit pas à lui seul pour invalider la formule (III.38) de l'approximation à un taux dans ce domaine. On obtient en effet la valeur K = 2 simplement en portant $\Delta = \alpha \, |\epsilon_o|^2$ dans cette formule, ce qui n'est rigoureux pour calculer un signal d'ions global que si (entre autres) pour toutes les classes de vitesse Doppler on a : $|\Delta - \alpha \, |\epsilon_o|^2| \ll \gamma \, |\epsilon_o|^2$, ce qui n'est pas le cas. Pour établir ceci, on a fait un calcul numérique prenant en compte à la fois l'effet Doppler et les inhomogénéités spatiales de l'éclairement, en supposant simplement pour ces dernières une dépendance gaussienne de I_1 par rapport à une dimension de l'espace (z). Le calcul consiste donc simplement en une intégrale double du type :

$$P_{MAX}^{ION} \propto \int_{R^2} \frac{r_{01}^2 \, \gamma |\epsilon|^2 \, t}{(\Delta - \alpha \, |\epsilon|^2)^2 + (\frac{\gamma}{2} \, |\epsilon|^2)^2} \, G(\Delta) \, d\Delta \, dz \qquad (5)$$

avec $\quad |\epsilon|^2 = |\epsilon_o|^2 \exp(-z^2/z_o^2)$

Les résultats du calcul sont exprimés par la figure V.9 ; la pente maximale à faible éclairement est de 2,9 ou 2,8 selon le jeu de paramètres atomiques pris en compte. On comprend intuitivement ce point en considérant le cas d'une vapeur atomique à très haute température, où la largeur Doppler serait très supérieure à la largeur naturelle de l'ionisation $\gamma \, |\epsilon_o|^2$. En pareil cas, on peut en effet reprendre l'approximation utilisée en (III.4) :

$$\frac{1}{(\Delta - \alpha|\epsilon|^2)^2 + (\frac{\gamma}{2} \, |\epsilon|^2)^2} \cong \frac{2\pi}{\gamma \, |\epsilon|^2} \cdot \delta(\Delta - \alpha|\epsilon|^2) \qquad (6)$$

D'où, en intégrant sur la répartition Doppler G (Δ) :

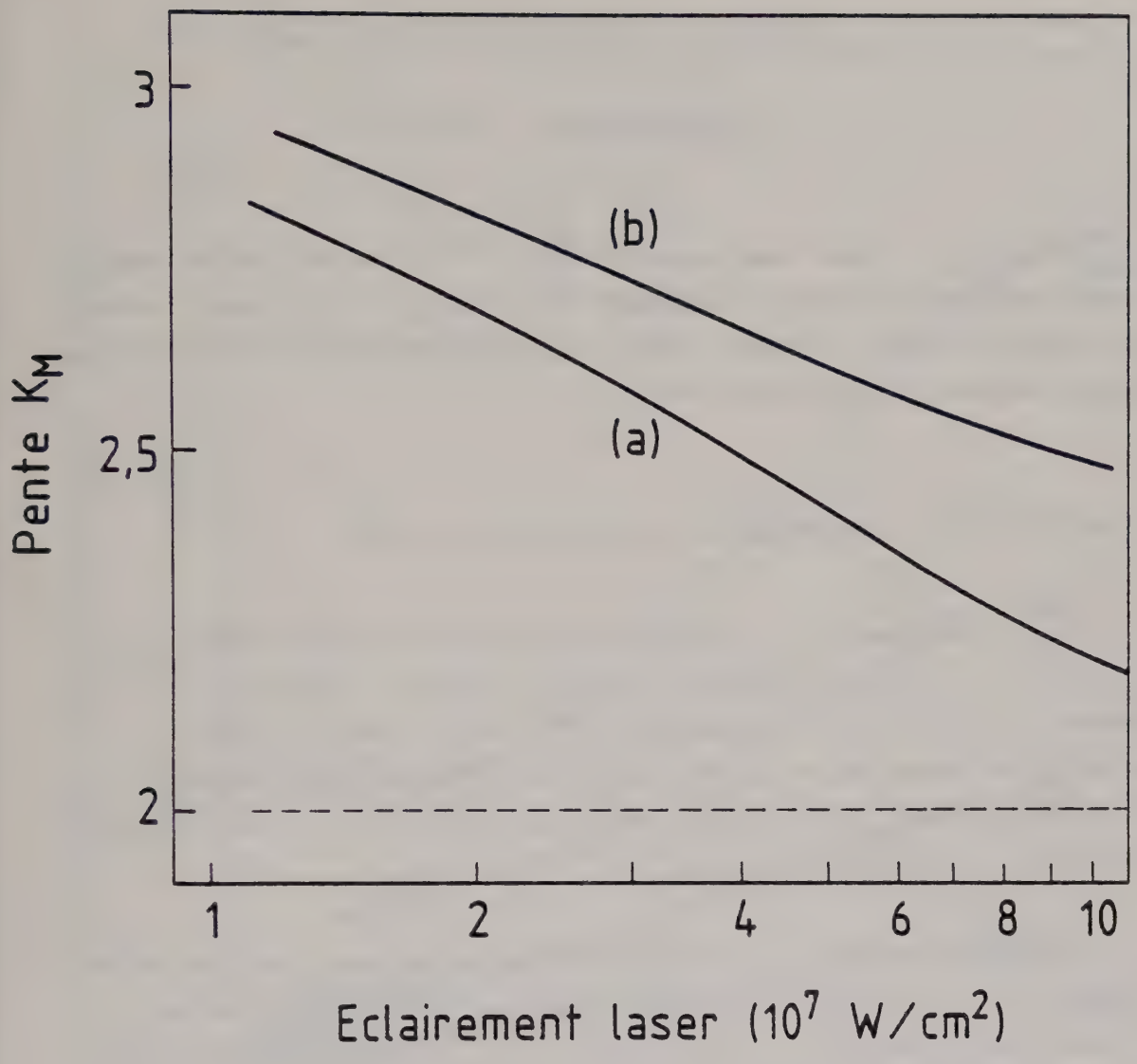


Figure V.9 - Calcul de $K_M = (\partial \text{ Log } N_{MAX}^{ION} / \partial \text{ Log } I_1)$ en fonction de l'éclairement pour deux jeux de paramètres atomiques : (a) paramètres de la référence / 66 / ; (b) paramètres de la référence / 53 / ; (d'après la formule V.5).

$$P^{ION} = 2\pi |r_{01}|^2 |\epsilon|^6 \cdot \int G(\Delta)\, \delta(\Delta - \alpha |\epsilon|^2)\, d\Delta$$
$$= 2\pi |r_{01}|^2\, G(\alpha |\epsilon|^2)\, |\epsilon|^6 \qquad (7)$$

Donc, $P^{ION}_{MAX} \propto I_1^3$; il s'agit simplement du fait qu'à cause de l'effet Doppler peu d'atomes sont effectivement résonnants. La largeur $\gamma |\epsilon_o|^2$ étant linéaire en éclairement, le nombre d'atomes effectivement résonnants est proportionnel à I_1, ce qui rajoute + 1 à la valeur de K_M.

V.5 - LARGEURS DE RÉSONANCE EN LUMIÈRE MULTIMODE

On a vu au Chapitre III que, selon le modèle en bande nulle, la largeur L.T.M.H. du profil de résonance est une fonction linéaire de l'éclairement, alors qu'elle se confond avec la largeur laser L.T.M.H. γ_L pour le modèle en bande large. On va voir, d'une part que cette dernière prédiction est infirmée, d'autre part que la largeur totale est une fonction non additive des deux paramètres I_1 et γ_L.

La largeur du profil de résonance est mesurée dans tous les cas sur le pic hyperfin F = 4, qui est le moins affecté par les fluctuations du signal d'ions, sauf bien sûr pour les valeurs de I_1 et γ_L où les deux pics hyperfins ne sont plus discernables auquel cas on prend en compte le profil unique de la résonance 6S-6F.

La figure V.10 montre une série de courbes donnant les largeurs $\Delta\nu_r$ (à 1 photon) des profils de résonance en fonction de l'éclairement moyen, pour trois largeurs de raie multimodes et pour la lumière monomode. Il faut tripler les largeurs expérimentales pour comparer avec les résultats théoriques de la Table III.4, exprimés à 3 photons.

L'existence des structures fines et hyperfines de la transition est une gêne pour l'estimation des largeurs de résonance ; en effet, on désirerait remonter à la largeur "intrinsèque" du profil, celle qu'on aurait trouvée si l'on avait été en présence d'un pur système à deux niveaux. A cette fin, les courbes A et B de la figure V.10, correspondant respectivement

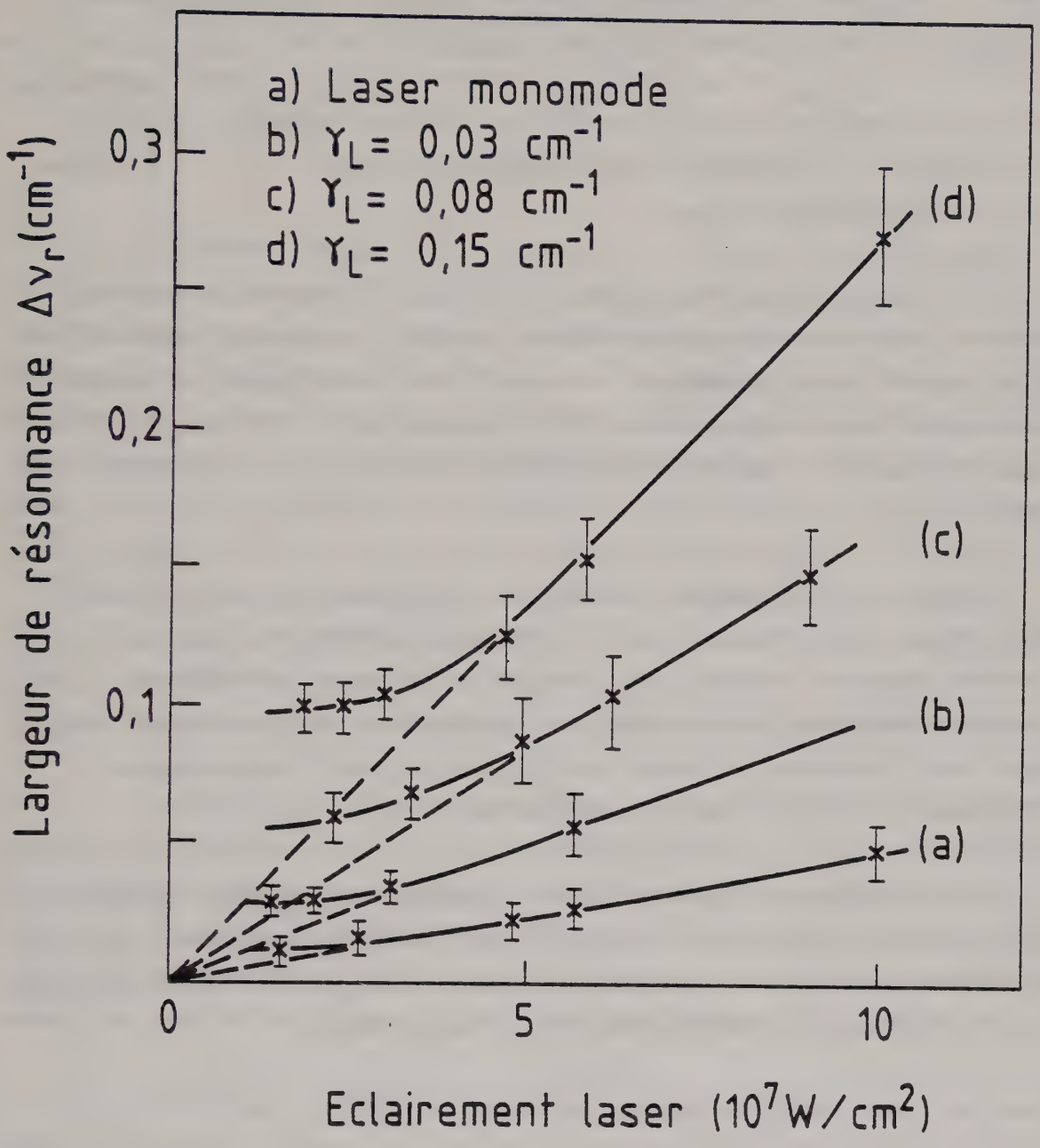


Figure V.10 - Largeur $\Delta\nu_r$ du profil de résonance ramenée à l'énergie d'un photon laser, en fonction de l'éclairement et pour différentes valeurs de la largeur spectrale laser γ_L.

aux lumières monomode et multimode de largeur 0,03 cm^{-1} (6 modes), donnent à éclairement faible la largeur d'un seul pic "fin" (id est : $|6S_{1/2}, F = 4 > \rightarrow |6F_{5/2} >$ ou $|6S_{1/2}, F = 4 > \rightarrow |6F_{7/2} >$), puis lorsque I_l est assez fort pour que la structure fine ne soit plus résolue, la largeur du pic hyperfin F = 4 diminuée de la séparation $\Delta_F = 0,033\ cm^{-1}$ (à 1 photon) entre les deux composantes fines.

De façon analogue, les courbes C et D qui correspondent respectivement à des largeurs multimodes de 0,08 et 0,15 cm^{-1} donnent à faible éclairement la largeur du pic hyperfin F = 4 puis à fort éclairement la largeur totale du profil de résonance unique 6S-6F diminuée de la distance $\Delta_H = 0,1\ cm^{-1}$ séparant les deux composantes hyperfines, dès que celles-ci ne sont plus résolues.

On voit sur la figure V.10 que les différentes courbes ont sensiblement la forme d'hyperboles ; aux forts éclairements, elles semblent admettre des asymptotes passant par l'origine ; la largeur de résonance est alors proportionnelle à l'éclairement, le coefficient de proportionnalité augmentant avec le nombre de modes. Nous aurons recours à des arguments semi-empiriques pour expliquer ce comportement.

Considérons tout d'abord le cas des forts éclairements. Comme on s'attend à ce que les effets de largeur de raie y soient moindres, il est logique de reprendre alors les formules en bande nulle, qui fournissent bien une largeur de résonance proportionnelle à l'éclairement :

$$3\ \Delta\nu_r = 4,13\ \alpha\ \ <|\epsilon^2|> \propto I_l \qquad (8)$$

Pour $I_l = 10^8\ W/cm^2$, où la comparaison risque le moins d'être entâchée par les élargissements dus à l'effet Doppler et à l'inhomogénéité spatiale de l'éclairement, cette formule (8) fournit :

$$\Delta\nu_r = 0,275\ cm^{-1} \qquad (9)$$

ce qui coïncide avec le résultat de la courbe D, correspondant à une lumière multimode de $\gamma_L = 0,15\ cm^{-1}$; par contre, pour la courbe C ($\gamma_L = 0,08\ cm^{-1}$) le désaccord est significatif, alors qu'on s'est pourtant rapproché d'une situation de bande nulle.

En fait, si l'on reprend la démonstration de la formule (8), on voit que le facteur 4,13 représente simplement la largeur à mi-hauteur de la fonction :

$$y = f(x) = \exp(-x)\, x^3 \qquad (10)$$

Le facteur exponentiel provient de la distribution de probabilité de l'éclairement $\exp(-|\mathcal{E}|^2/|\mathcal{E}_o|^2)$. On sait qu'une telle distribution apparaît seulement dans le cas limite d'un très grand nombre de modes lasers indépendants. Pour un nombre de modes fini, le facteur $\exp(-x)$ dans (10) est remplacé par une autre distribution de probabilité $\phi(x)$ dépendant du nombre de modes, de la répartition de la puissance laser totale entre les modes et, en toute rigueur, des corrélations entre modes si elles existent. Si l'on admet donc que la pente des asymptotes des courbes B, C, D de la figure V.10 est proportionnelle à la largeur à mi-hauteur d'une fonction du type $\phi(x)\, x^3$, on est amené à dire que la limite gaussienne de la statistique laser n'est atteinte que pour une largeur γ_L de 0,15 cm^{-1} environ. Nous reviendrons sur ce point de façon plus quantitative au chapitre suivant.

Un autre point intéressant réside dans le fait que la largeur des profils de résonance à faible éclairement (mesurée à 1 photon) est inférieure à la largeur laser γ_L, contrairement aux prédictions du modèle en bande large (cf. équation (III.55)). Pour justifier ce résultat, on peut avoir recours à un traitement perturbatif en bande large du système résonnant, qui permet de traiter des formes de raie laser quelconques (cf. III.5).

On va donc considérer que les couplages atomiques sont négligeables devant la largeur laser γ_L, que l'ionisation est très faible et calculer l'évolution du système sur des temps $t >> \gamma_L^{-1}$. Si l'on suppose qu'un état quasi-stationnaire est atteint, puisque la dépopulation est très lente, on peut prouver la formule suivante :

$$\frac{dP^{ION}}{dt} = R^{ION} = 2\,\pi\, m!\, |r_{01}|^2 \left(\frac{1}{2\,\varepsilon_o\, c}\right)^m \cdot P^{(*m)}(\Delta) \qquad (11)$$

où $P^{(*m)}(\Delta)$ désigne la $m^{ième}$ puissance d'autoconvolution du spectre laser, soit :

$$P^{(*m)}(m\omega - \omega_{10}) = \int \prod_{1}^{m} P(\omega_i) \cdot \delta\left(\omega - \sum_{1}^{m} \omega_i\right) \prod_{1}^{m} d\omega_i \qquad (12)$$

On désigne $P^{(*m)}$ sous le nom de puissance spectrale effective à l'ordre n, noté $P_{eff}(\Delta)$.

Ce résultat est une simple conséquence de la loi de conservation de l'énergie. Il signifie que lorsque l'on s'écarte de la résonance, la probabilité d'ionisation décroît exactement aussi vite que la probabilité pour la somme des énergies de m photons lasers "pris au hasard" d'égaler exactement l'énergie du niveau résonnant $|1>$.

Prouvons la formule (11) ; l'approximation de décorrélation permet d'écrire, en reprenant l'équation (III.22) :

$$\frac{dP^{ION}}{dt} = <\gamma\,|\epsilon|^2><\sigma_{11}> = -2\,\mathrm{Im}<\epsilon^{*m} r_{01}^{*}\,\sigma_{01}> \qquad (13)$$

où l'on reporte le résultat (IV.43) en y portant $\alpha = \gamma = 0$:

$$\frac{dP^{ION}}{dt} = 2\,|r_{01}|^2 \cdot \mathrm{Re} \cdot \int_0^{\infty} \exp(i\Delta\tau)\; G^{(m,m)}(t,t+\tau)\, d\tau \qquad (14)$$

On a pu étendre à l'infini la borne de l'intégrale grâce à $t >> \gamma_L^{-1}$.
Par utilisation du théorème des moments (I.37), on peut écrire aussi :

$$R^{ION} = m!\,|r_{01}|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i\Delta\tau) \left(G^{(1,1)}(t,t+\tau)\right)^m d\tau \qquad (15)$$

Un calcul immédiat montre qu'on réobtient ainsi pour un champ chaotique de spectre lorentzien (C.G.L.) la formule (III.55), d'où le décalage Stark et la largeur d'ionisation ont bien sûr disparu. La formule (11) s'obtient à partir de (15) en utilisant le théorème de Wiener-Khintchine (I.11) et les propriétés usuelles des transformées de Fourier.

Si l'on applique la formule (11) pour un spectre laser gaussien, nettement plus proche de notre cas expérimental, il vient :

$$R^{ION} = K \cdot \exp\left(-4\log(2)\left(\frac{\Delta}{\sqrt{m}\,\gamma_L}\right)^2\right) \qquad (16)$$

avec :

$$K = 2\,\pi\,m!\,\sqrt{\frac{4\,\log(2)}{\pi}}\;|r_{01}|^2\;.\;|\epsilon_o|^{2m}\;\frac{1}{\sqrt{m}\,\gamma_L} \qquad (17)$$

En énergie de la transition à m photons, la largeur à mi-hauteur de $R^{ION}(\Delta)$ est donc $\sqrt{m}\,\gamma_L$; en énergie d'un photon, $\Delta\nu_r$ vaudra donc seulement $(\gamma_L/\sqrt{m}) < \gamma_L$. Si l'on compare à la figure V.10, en prenant encore la courbe D ($\gamma_L = 0{,}15\ cm^{-1}$) pour rendre relativement négligeables les largeurs expérimentales résiduelles telles que l'effet Doppler, on prévoit qu'à éclairement faible :

$$\Delta\nu_r = 0{,}15\ cm^{-1}\;.\;\frac{1}{\sqrt{3}} = 0{,}087\ cm^{-1} \qquad (18)$$

ce qui coïncide presque avec la valeur expérimentale alors que le modèle C.G.L. prédit $\Delta\nu_r = 0{,}15\ cm^{-1}$. On voit donc ici qu'un détail tel que la forme spectrale du modèle de champ choisi généralement (C.G.L.) peut amener un désaccord notable entre théorie et expérience.

C'est le calcul effectué sur le laser à spectre gaussien qui est en fait le plus général. Si on assimile la densité de puissance spectrale (en la normalisant) à une densité de probabilité d'écart-type σ, l'écart-type de $P_{eff}(\Delta)$ est, mathématiquement, $\sqrt{m}.\sigma$. Si au cours des convolutions successives le rapport entre écart-type et largeur à mi-hauteur reste à peu près constant, la largeur L.T.M.H. de $P_{eff}(\Delta)$ vaut donc environ $\sqrt{m}.\gamma_L$. En se ramenant à l'énergie d'un seul photon laser, il vient :

$$\Delta\nu_r = \frac{1}{\sqrt{m}}\;.\;\gamma_L \qquad (19)$$

Ce qui précède ne s'applique pas à la forme spectrale lorentzienne, simplement parce que les variables aléatoires dont la densité de probabilité est lorentzienne ont un écart-type infini ; en termes plus mathématiques, les variables aléatoires lorentziennes ne sont pas de carré intégrable, propriété "pathologique" qui implique par exemple qu'elles ne vérifient pas la loi des grands nombres.

Dans le cas général, on peut tirer des considérations précédentes une formule semi-empirique approchée donnant la largeur de résonance en fonction des paramètres I_1 et γ_L. Si on suppose que le profil de résonance

est donné approximativement par la convolution du profil théorique en bande nulle et de $P_{eff}(\Delta)$, et si on admet encore que les largeurs à mi-hauteur sont proportionnelles aux écarts-types, alors il vient :

$$3\,\Delta\nu_r = \sqrt{3\,\gamma_L^{\,2} + 4{,}13\,\alpha\,|\epsilon_o|^2} \qquad (20)$$

On retrouve bien une famille d'hyperboles, comme sur la figure V.10. Sur la figure V.11, la courbe en trait plein résulte de l'application de (20) pour $\gamma_L = 0{,}15\ cm^{-1}$, les barres d'erreur expérimentales étant relatives à cette même valeur (courbe D de la figure V.10). La formule (20) rend donc bien compte qualitativement de la largeur de résonance. On a vérifié par ailleurs que la courbe obtenue par le calcul rigoureux de la convolution était peu différente.

Pour étendre ceci à des largeurs laser γ_L inférieures à $0{,}15\ cm^{-1}$, il faudrait d'une part connaître théoriquement la valeur par laquelle remplacer 4,13 (qui correspond à la limite gaussienne de la statistique laser), et d'autre part prendre en compte les effets d'élargissements expérimentaux qui donnent, à $10^8\ W/cm^2$, une largeur "intrinsèque" de $0{,}05\ cm^{-1}$ au profil de résonance tracé en monomode (figure V.3).

V.6 - AIRES DES COURBES DE RÉSONANCE

Rappelons qu'on désigne ainsi la quantité $S = \int_{-\infty}^{+\infty} P^{ION}(\Delta)\,d\Delta$; le rapport R_S des surfaces des profils de résonance tracés en lumière multimode et monomode fait l'objet d'une concordance intéressante entre modèles en bande nulle et en bande large, qui donnent tous deux (cf. Chapitre III) :

$$R_S = m! = 6 \qquad (21)$$

Une source importante d'imprécision dans la comparaison avec l'expérience réside dans les fluctuations du signal d'ions du côté des courtes longueurs d'onde (figures V.5 et V.6). D'autre part, aux faibles éclairements, l'incertitude sur la longueur d'onde n'est plus négligeable devant la largeur du profil de résonance en monomode, ce qui interdit pratiquement toute mesure valable de R_S. Tous les profils de résonance expérimentaux ayant l'aspect

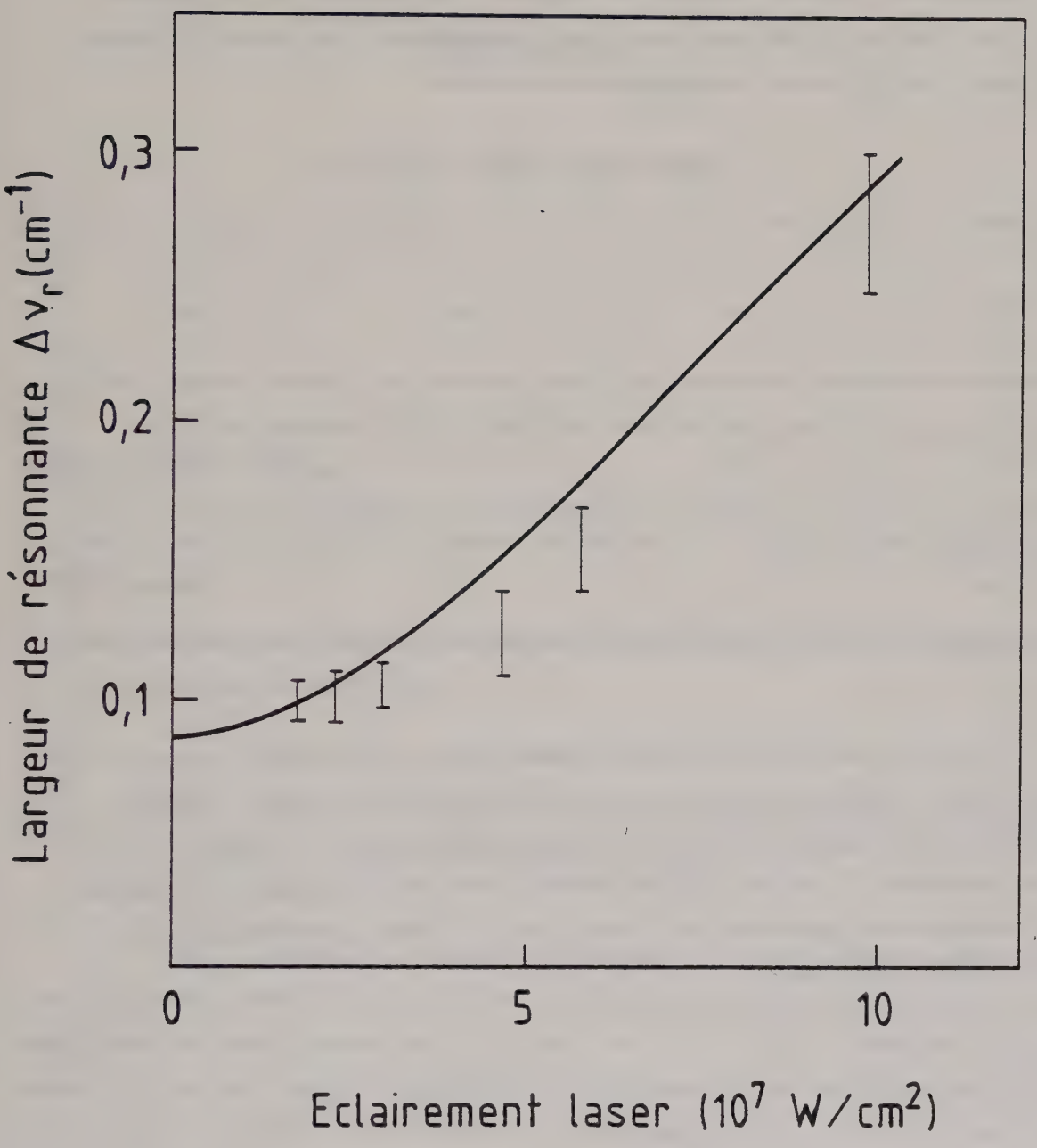


Figure V.11

Courbe en trait plein : valeur théorique de la largeur de résonance en fonction de l'éclairement, d'après la formule (20).

Barres d'erreur : valeurs expérimentales de $\Delta\nu_r$ pour une largeur spectrale laser de 0,15 cm^{-1}.

d'une gaussienne (c'est-à-dire d'une parabole, sur les graphiques en coordonnées semi-logarithmiques) nous avons admis qu'il était raisonnable d'assimiler la surface au produit hauteur x largeur à mi-hauteur, à un facteur constant près (valant 1,064 pour une vraie gaussienne). La Table V.I donne des résultats pour R_S ainsi déterminé :

TABLE V.I

I_1 \ γ_L	0,03 cm^{-1}	0,08 cm^{-1}	0,15 cm^{-1}
5.10^7 W/cm^2	5 ∓ 25 %	5,3 ∓ 25 %	6,6 ∓ 30 %
10^8 W/cm^2	4 ∓ 25 %	4 ∓ 30 %	5,8 ∓ 30%

L'accord peut être considéré comme assez satisfaisant, compte tenu des incertitudes expérimentales dues aux fluctuations du signal d'ions, inhérentes à l'expérience. Des valeurs de R_S inférieures à 6 pour $\gamma_L < 0,10$ cm^{-1} s'interprètent là encore naturellement comme une conséquence du caractère non parfaitement gaussien de l'amplitude du champ électromagnétique émis par le laser multimode.

CHAPITRE VI

CALCULS COMPLEMENTAIRES

On se propose ici de préciser deux points particuliers de l'interprétation des résultats :

- l'effet de la finitude du nombre des modes sur l'aspect des profils de résonance,
- l'influence de la largeur spectrale du laser sur le facteur d'accroissement R_α du décalage Stark effectif.

VI.I - CALCUL DE LA DISTRIBUTION DE PROBABILITÉ DE L'ÉCLAIREMENT INSTANTANÉ, POUR UN NOMBRE DE MODES FINI

On a invoqué, au chapitre précédent, le fait qu'une lumière laser avec un petit nombre de modes n'avait pas une statistique gaussienne pour expliquer le comportement de la largeur des profils de résonance. Il est possible, en utilisant l'approximation de bande nulle, de faire des estimations quantitatives de la vitesse de convergence vers la statistique limite. Pour ce faire, il nous faudra toutefois accepter l'hypothèse de modes lasers statistiquement indépendants.

On se pose donc le problème général suivant : étant donné un laser fournissant un éclairement moyen I_1 réparti sur M modes indépendants d'éclairements I_1, I_2, ..., I_M fixés, quelle est la loi de probabilité suivie par l'éclairement total I_t sachant que les phases ϕ_i des différents modes sont indépendantes et équiréparties sur $[0,2\pi]$?

Il est commode d'utiliser pour le calcul les éclairements partiels normalisés 1_i et les amplitudes partielles normalisées α_i définies par :

$$1_i = I_i / I_1 \qquad \text{et} \qquad \alpha_i = \sqrt{1_i} \tag{1}$$

avec $I_1 = \sum_1^M I_i$ d'où : $\sum_1^M 1_i = \sum_1^M \alpha_i^2 = 1$

En notant ϵ_o l'amplitude quadratique moyenne du champ total, l'amplitude complexe ϵ du champ total s'écrit donc :

$$\epsilon = \epsilon_x + i\,\epsilon_y = \epsilon_o \sum_1^M \alpha_j \exp(i\,\phi_j) \tag{2}$$

Pour atteindre la loi de probabilité de I_t, on cherche celle de ϵ, dont on détermine tout d'abord la transformée de Fourier :

$$\psi(\lambda_x, \lambda_y) = \langle \exp(-i\,\lambda_x \epsilon_x - i\,\lambda_y \epsilon_y) \rangle =$$

$$= \int_o^{2\pi} \exp\left(-i\,\lambda_x \epsilon_o \sum_j \alpha_j \cos\phi_j - i\,\lambda_y \epsilon_o \sum_j \alpha_j \sin\phi_j\right) \prod_j \left(\frac{d\phi_j}{2\pi}\right)$$

$$= \prod_j \int_o^{2\pi} \exp(-i\,\lambda_x \epsilon_o \alpha_j \cos\phi_j - i\,\lambda_y \epsilon_o \alpha_j \sin\phi_j) \frac{d\phi_j}{2\pi} \tag{3}$$

On introduit alors les coordonnées polaires de λ, pour simplifier l'intégrale :

$$\lambda_x + i\,\lambda_y = \rho \exp(i\theta) \tag{4}$$

d'où l'on tire :

$$\psi(\lambda_x, \lambda_y) = \prod_j \int_o^{2\pi} \exp(-i\,\epsilon_o \alpha_j \rho \cos(\theta - \phi_j)) \frac{d\phi_j}{2\pi}$$

$$= \prod_j J_o(\epsilon_o \alpha_j \rho) \tag{5}$$

où J_o désigne la fonction de Bessel d'ordre 0. On obtient alors la loi de probabilité de ϵ en prenant la transformée de Fourier inverse :

$$P(\epsilon_x, \epsilon_y) = \frac{1}{4\pi^2} \int \exp (i \lambda_x \epsilon_x + i \lambda_y \epsilon_y) \prod_j \{ J_o (\epsilon_o \alpha_j \sqrt{\lambda_x^2 + \lambda_y^2}) \} d^2\lambda \tag{6}$$

En posant : $\epsilon_x + i \epsilon_y = r \exp (i\phi)$, il vient :

$$P(\epsilon_x, \epsilon_y) = \frac{1}{4\pi^2} \iint \exp (ir\rho \cos (\theta-\phi)) . \prod_j J_o (\epsilon_o \alpha_j \rho) \rho \, d\rho \, d\theta =$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_o^\infty J_o (r\rho) . \prod_j (J_o (\epsilon_o \alpha_j \rho)) . \rho \, d\rho \tag{7}$$

Une transformation simple donne alors la loi de probabilité de l'éclairement réduit I_t/I_1 :

$$P(I_t/I_1) = \frac{1}{2} \int_o^\infty J_o (x \sqrt{\frac{I_t}{I_1}}) \prod_j \{ J_o (x \alpha_j) \} x dx \tag{8}$$

L'intégrale (8) fournit un moyen très général de faire des calculs sur ces statistiques "intermédiaires". Elle permet entre autres de réobtenir les résultats de Debéthune (Chapitre II) / 28 / sur les moments d'ordre N de l'éclairement, bien que pour des ordres N élevés les propriétés numériques de la fonction à intégrer soient incommodes.

Pour de très grand nombres de modes, les quantités α_i sont très inférieures à 1 et on montre qu'on peut approcher dans l'intégrale les fonctions de Bessel par leurs développements de Taylor :

$$\prod_j J_o (x \alpha_j) \cong \prod_j (1 - \frac{x^2 \alpha_j^2}{4}) \cong \exp (- \frac{x^2}{4} \sum_j \alpha_j^2) = \exp (- \frac{x^2}{4}) \tag{9}$$

La formule de Weber / 88 / donne alors :

$$P(I_t/I_1) = \frac{1}{2} \int_o^\infty \exp (- \frac{x^2}{4}) J_o (x \sqrt{\frac{I_t}{I_1}}) . x dx = \exp (- \frac{I_t}{I_1}) \tag{10}$$

On retrouve donc bien la loi exponentielle pour l'éclairement.

Dans le cas d'un mode unique, l'intégrale (8) doit être interprétée comme une distribution en la variable (I_t/I_1) et les formules de la transformation de Fourier-Bessel / 88 / permettent de montrer que :

$$P\left(\frac{I_t}{I_1}\right) = \frac{1}{2} \int_o^\infty J_o\left(x\sqrt{\frac{I_t}{I_1}}\right) \cdot J_o(x)\, x\,dx = \delta\left(\frac{I_t}{I_1} - 1\right) \qquad (11)$$

résultat qui était bien sûr physiquement évident, à priori.

A notre connaissance, il n'existe malheureusement pas d'expression analytique pour l'intégrale (8) au-delà de trois modes (cas pour lequel on se ramène à une fonction elliptique de première espèce).

VI.2 - APPLICATION AU CALCUL DES PROFILS DE RÉSONANCE, EN BANDE NULLE

D'après les considérations développées au Chapitre V, la probabilité d'ionisation en bande nulle est donnée par la formule suivante, pour peu que α soit grand devant γ :

$$R^{ION}(\Delta) \cong 2\pi \frac{r_{01}^2}{\alpha} |\epsilon_o|^4 \cdot P\left(\frac{\Delta}{\alpha |\epsilon_o|^2}\right) \cdot \left(\frac{\Delta}{\alpha \epsilon_o^2}\right)^3 \qquad (12)$$

P désignant la loi de probabilité de l'éclairement réduit, donnée par la formule (8). Connaissant cette fonction P, on peut donc calculer les paramètres des profils de résonance (largeurs à mi-hauteur, positions des maxima, etc...) pour une répartition quelconque de l'énergie laser totale dans les différents modes.

Nous avons donc déterminé numériquement la fonction P en supposant que le spectre du laser avait une enveloppe gaussienne :

$$\alpha_i^2 = \text{Constante} \times \exp\left(-4 \log 2 \left(\frac{i - i_o}{\gamma_L}\right)^2\right) \qquad (13)$$

l'unité de mesure de la largeur spectrale étant bien sûr l'I.S.L.

La figure VI.1 montre donc les évolutions ainsi déterminées de la largeur, de la hauteur et de la position du maximum du profil de résonance, en fonction de la largeur spectrale γ_L. Pour la clarté du dessin, nous avons divisé chacune de ces quantités par sa valeur asymptotique pour un très grand nombre de modes ; les trois courbes admettent donc la droite $y = 1$ pour asymptote.

On voit sur la figure que la convergence du décalage Stark effectif est très rapide, ce qui concorde bien avec la situation expérimentale : une valeur de R_α égale à 2,8 est obtenue pour des largeurs lasers aussi faibles que 0,03 cm^{-1} (6 I.S.L.), et aucun effet de la variation de la statistique de l'éclairement sur R_α n'a pu être mis en évidence.

Par contre, nous avons vu expérimentalement un effet de cette variation sur la largeur du profil de résonance, aux forts éclairements. La figure montre bien que pour cette quantité la convergence est beaucoup plus lente que pour R_α. Cependant, il n'y a pas accord quantitatif : la courbe (c) de la figure V.10 montre bien que pour γ_L = 0,08 cm^{-1} (16 modes) nous sommes encore loin de la valeur asymptotique, alors que selon la figure VI.1 nous aurions dû atteindre 95 % de cette valeur. Ce désaccord doit sans doute être interprété en terme de couplages entre modes lasers voisins, dont nous avons déjà fait mention à propos des expériences de Sanchez et Lecompte / 32 /.

On sait que de tels couplages existent, notamment dès lors que la largeur homogène de la transition laser dépasse l'intervalle spectral libre, les modes s'alimentant alors sur les mêmes populations d'ions Néodyme. Or, les positions des atomes entourant les ions Nd^{3+} dans le barreau laser subissent des fluctuations thermiques, ce qui cause une relaxation transverse rapide de la transition laser.

La largeur homogène créée par ce processus peut être plus grande que l'I.S.L. tout en restant complètement masquée par la largeur inhomogène, de l'ordre de la centaine de cm^{-1}.

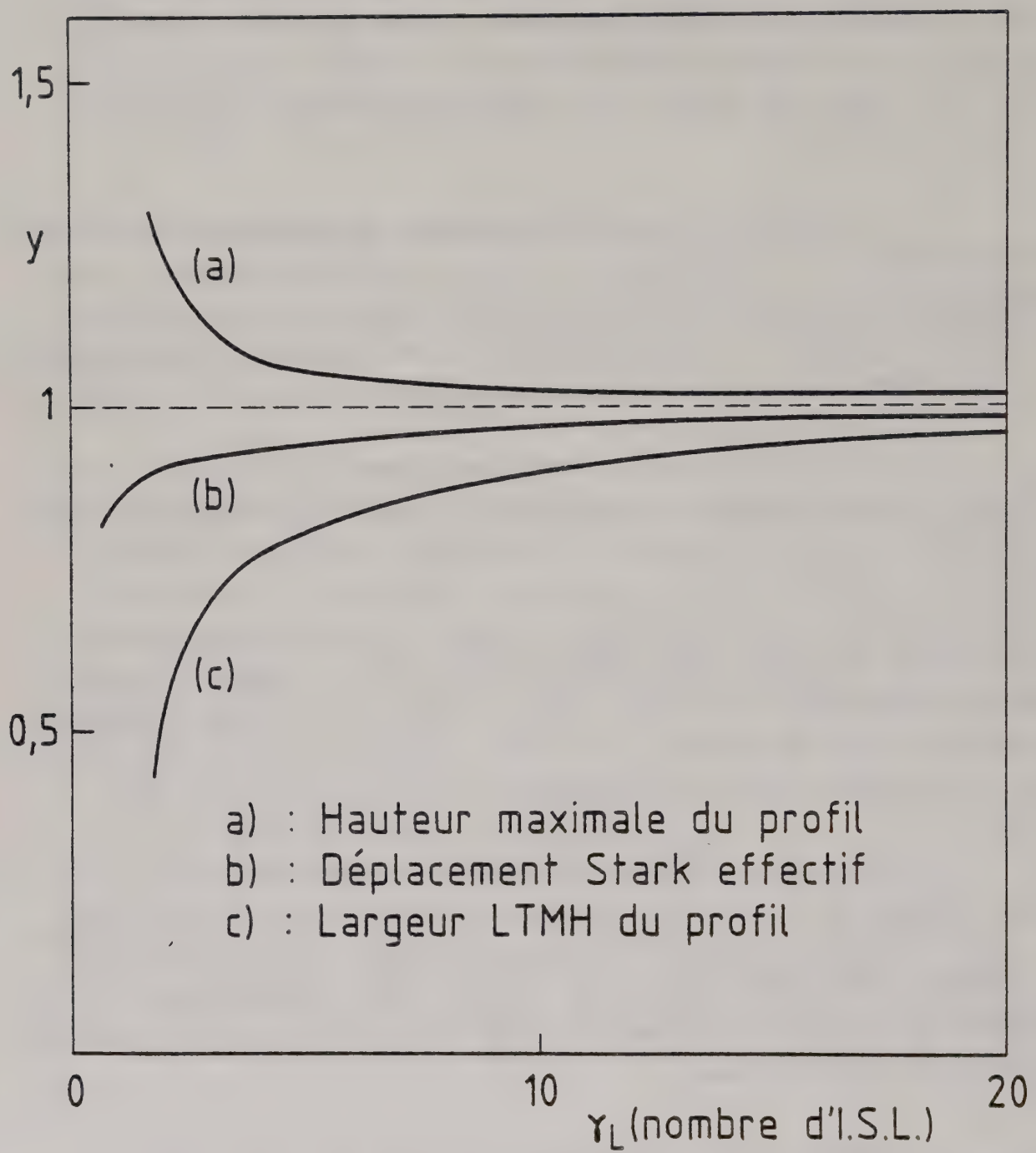


Figure VI.1 - Vitesses de convergence vers la limite gaussienne des paramètres des profils de résonance (en bande nulle).

VI.3 - Calcul du décalage Stark effectif avec le modèle C.G.L.

P. Zoller / 51 / a calculé numériquement le facteur R_α en fonction de la largeur laser γ_L, en utilisant le modèle C.G.L. du champ et les équations (III.58, 60) donc en abandonnant l'approximation de bande large. La figure VI.2 montre les résultats du calcul pour plusieurs valeurs du rapport α/γ. Si ce rapport n'est pas trop faible, on obtient bien le comportement attendu de R_α qui passe de 3 à 4 lorsque la largeur laser augmente. On constate également sur la figure qu'une forte largeur d'ionisation tend à diminuer R_α, mais nous ne sommes certainement pas dans le domaine où cet effet pourrait être visible.

La figure VI.3 montre les résultats du même calcul reportés sur la figure V.4, qui donnait les valeurs expérimentales du décalage Stark effectif en fonction de l'éclairement laser. On a tracé deux courbes théoriques, pour $\gamma_L = 0{,}04\ cm^{-1}$ (a) et $\gamma_L = 0{,}15\ cm^{-1}$ (b) ; le désaccord est apparemment significatif en ce qui concerne la deuxième valeur. Il faudrait cependant nuancer ce jugement : nous avons admis implicitement jusqu'ici que dans la comparaison entre les raies gaussiennes de l'expérience et les raies lorentziennes du modèle C.G.L., deux spectres étaient homologues si et seulement si ils avaient la même largeur à mi-hauteur. Le choix de ce critère se justifie par sa commodité, à la fois pour l'expérimentateur et pour les calculs théoriques utilisant le modèle C.G.L., mais il n'a rien d'absolu. On pourrait également convenir d'associer à une raie gaussienne la raie lorentzienne pour laquelle la largeur de la puissance spectrale effective à l'ordre 3 (au sens de l'équation (V.12)) est la même ; ou bien encore, on peut se souvenir que pour une raie gaussienne les 3/4 de la puissance résident sensiblement dans la largeur à mi-hauteur et donc décider que la raie lorentzienne homologue soit telle que les 3/4 de sa puissance totale résident dans une bande spectrale de largeur γ_L. Or, les largeurs L.T.M.H. des raies lorentziennes obtenues par ces deux derniers critères valent respectivement $0{,}577\ \gamma_L$ et $0{,}414\ \gamma_L$, si γ_L est la largeur L.T.M.H. expérimentale ; ceci traduit bien la grande différence de forme entre courbes gaussiennes et lorentziennes. Le désaccord avec le calcul mis en évidence sur la figure VI.3 est considérablement réduit, mais pas annulé, si l'on adopte un de ces deux derniers critères.

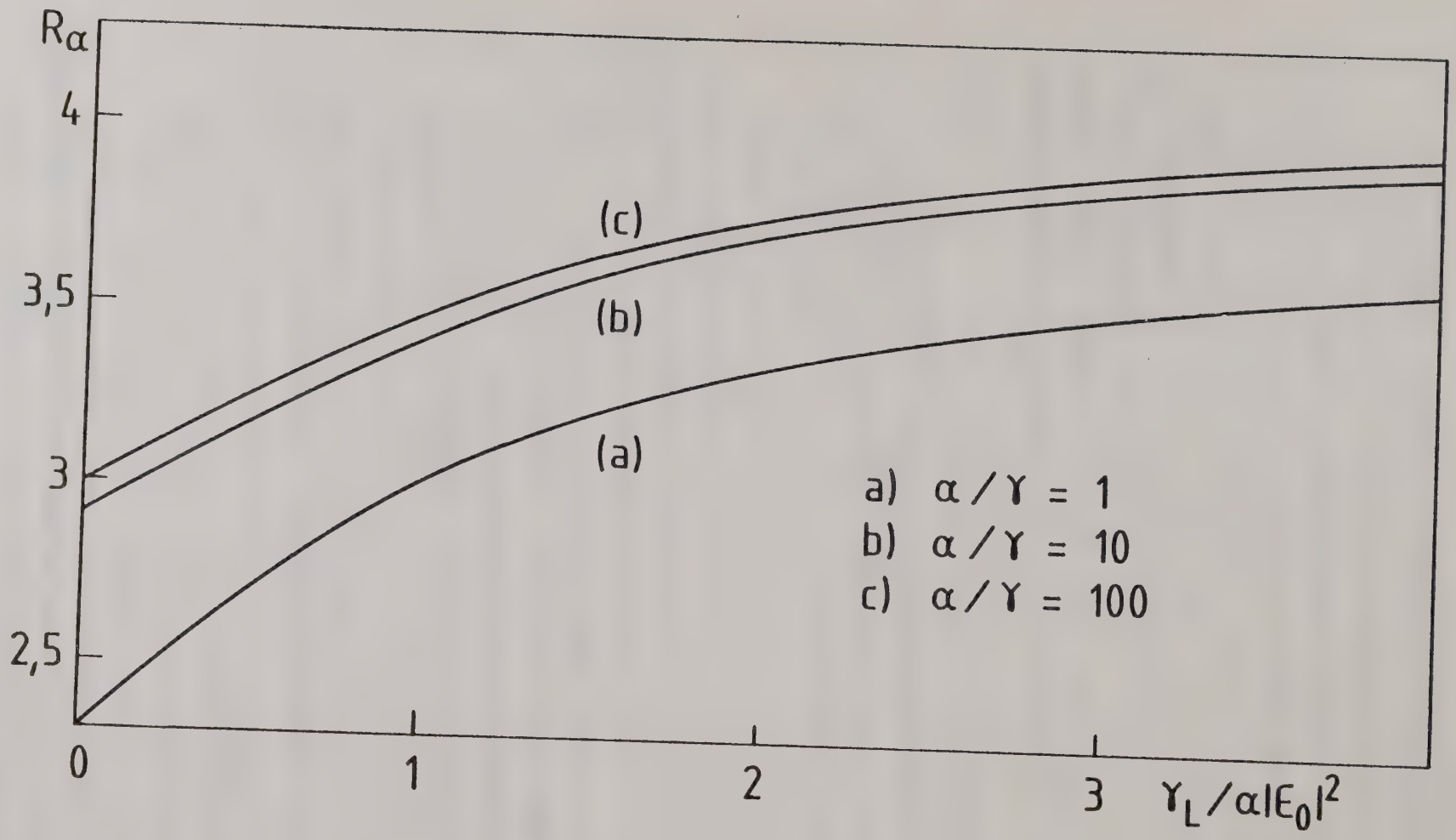


Figure VI.2 - Variation du rapport R_α entre le décalage du maximum du profil de résonance et le décalage Stark $\alpha\,|\epsilon_0|^2$ de la transition 6S-6F, en fonction de la largeur spectrale laser, selon le modèle C.G.L. / 51 /.

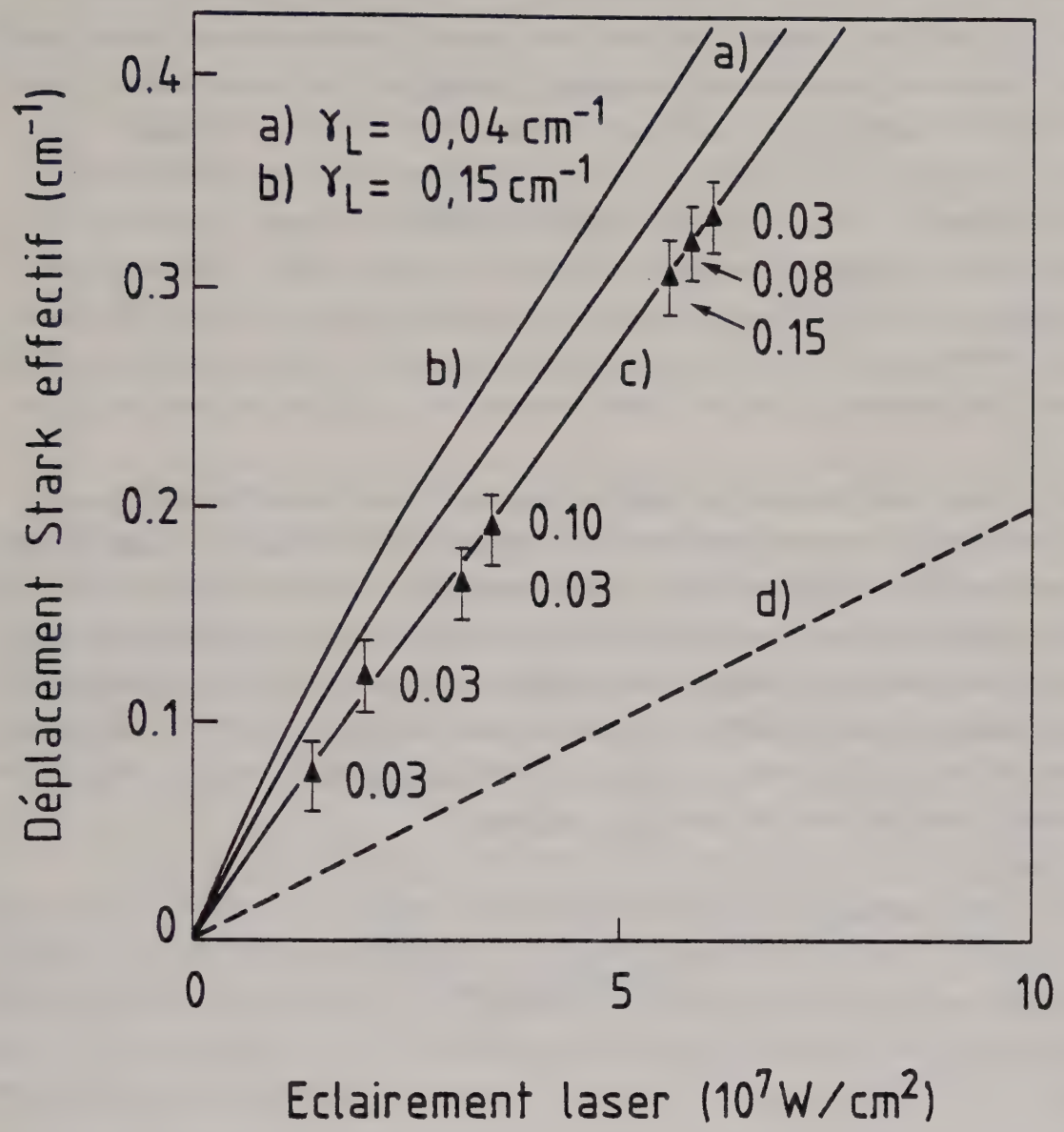


Figure VI.3 - Décalage du maximum des profils de résonance en fonction de l'éclairement ; a) et b) résultats du modèle C.G.L. pour respectivement 0,04 et 0,15 cm^{-1} ; c) expérimental ; d) monomode. La largeur laser utilisée est indiquée en cm^{-1} à côté de chaque barre d'erreur.

Au total, nous disposons de trois procédés, dont aucun n'est absurde, pour associer à la raie laser expérimentale son homologue lorentzienne. Le fait que ces procédés donnent des résultats aussi dispersés nous semble indiquer une faiblesse fondamentale du modèle lorentzien. Des comparaisons très précises entre expérience et théorie concernant les effets de largeur de raie sont sans objet, dès lors qu'il y a intrinsèquement une incertitude de plus d'un facteur 2 sur la largeur de raie à introduire dans le calcul. Il faut par ailleurs rappeler que pour calculer une valeur de R_α égale à 4 en bande large, nous avons dû faire appel à certaines propriétés particulières du modèle lorentzien (C.G.L.), et il ne peut être exclu que la valeur-limite de R_α pour les grandes largeurs lasers dépende de la forme du spectre laser.

Pour porter remède aux difficultés que nous venons de mentionner, il faut modifier le spectre du processus aléatoire modélisant le champ laser, ce qui implique (cf. Chapitre I) de considérer des processus aléatoires à plusieurs composantes complexes si l'on veut rester dans le cadre markovien. S'il n'est pas possible d'obtenir exactement ainsi une raie laser gaussienne, on peut néanmoins s'en approcher arbitrairement. En effet, on peut construire pour tout entier n un processus de Markov à n composantes, l'une de ces composantes ayant la densité spectrale suivante :

$$P_n(\omega - \omega_o) \propto \frac{1}{\left\{ 1 + \frac{4 \log 2}{n} \left(\frac{\omega - \omega_o}{\gamma_L} \right)^2 \right\}^n} \qquad (14)$$

et donc :

$$\lim_{n \to \infty} P_n(\omega - \omega_o) \propto \exp\left(- 4 \log 2 \left(\frac{\omega - \omega_o}{\gamma_L} \right)^2 \right) \qquad (15)$$

Il est d'ailleurs tout à fait vraisemblable que de petites valeurs de n suffiraient pour modéliser correctement une raie laser expérimentale. Par exemple la largeur L.T.M.H. de la raie théorique obtenue, à partir d'une raie expérimentale gaussienne de largeur γ_L, par le critère des 3/4 de la puissance, vaut déjà 0,78 γ_L pour un processus à deux composantes, contre 0,414 γ_L pour le modèle C.G.L., correspondant à n = 1.

CHAPITRE VII

CONCLUSIONS

Dans les études portant sur le rôle de la cohérence temporelle du laser dans les processus multiphotoniques non-résonnants, seule est à prendre en compte la distribution statistique de l'éclairement laser instantané, et il se trouve que tout l'effet de cette distribution se concentre dans un seul paramètre, la fonction d'autocorrélation normalisée d'ordre N. C'est donc essentiellement sur la détermination de ce facteur que portaient les expériences et les travaux théoriques.

Le fait d'utiliser un processus résonnant introduit une mémoire du système atomique, et permet donc de voir de plus le comportement temporel du laser, c'est-à-dire en premier lieu sont spectre. Dès que le nombre de modes est assez grand pour que le champ du laser multimode puisse être modélisé par un processus aléatoire gaussien, ce processus est en effet totalement déterminé par son spectre.

Si on ne tient pas compte de cette mémoire du système atomique, on peut mener un calcul strictement parallèle à celui effectué dans le cas non-résonnant. On a vu qu'un tel calcul fournit deux prédictions très importantes qui s'accordent bien avec nos résultats expérimentaux :

- l'aire du profil de résonance en lumière multimode est six fois plus grande que dans le cas cohérent,
- le décalage dû à l'effet Stark du maximum du profil de résonance est triplé par rapport au cas cohérent.

Sur le plan théorique, ces résultats se généralisent au cas d'un processus d'ionisation en deux étapes de m et 1 photons par des multiplications par m! et m pour respectivement l'aire du profil et le décalage Stark effectif, à condition que le couplage état résonnant-continuum soit dominant et que l'on se trouve dans les conditions de l'approximation à un taux.

On peut admettre que la mesure la plus significative de la force de la résonance est l'aire du profil plutôt que la probabilité d'ionisation au maximum. C'est en effet une quantité plus globale et moins sensible aux effets expérimentaux parasites. Alors, on peut dire que la leçon essentielle des études non-résonnantes, selon laquelle le passage en lumière gaussienne apporte un facteur m! à l'ionisation dans le cas d'une transition de m étapes non-résonnantes, est directement transposable au cas résonnant.

On a donc pu constater expérimentalement que l'existence d'une largeur spectrale finie du laser ne vient pas altérer ces résultats essentiels. Plus généralement, on peut dire que nos résultats expérimentaux se résument de la façon suivante : le profil de résonance en lumière multimode s'obtient à une bonne approximation par une superposition des effets de la statistique de l'éclairement et de la largeur spectrale laser, cette superposition s'exprimant mathématiquement de façon très simple par une convolution du profil en bande nulle par un "spectre effectif" du laser (ce spectre effectif peut être défini comme le spectre de l'harmonique laser qui exciterait le niveau résonnant par absorption d'un seul photon). En effet, une telle convolution ne modifie pas les résultats du modèle en bande nulle concernant les aires et les décalages Stark effectifs, et l'on a vu qu'elle rendait bien compte de la largeur des profils de résonance.

L'évolution du rapport h entre les signaux d'ions maxima en lumière multimode et monomode est particulièrement représentative d'une certaine séparabilité entre les effets de la distribution statistique de l'éclairement et ceux de la largeur spectrale laser. Lorsque la largeur spectrale passe de 20 MHz à 0,03 cm^{-1}, h passe de 1 à 2,5, ce qui est dû à la multiplication par 6 de l'aire du profil de résonance et s'interprète donc comme un effet de la distribution statistique de l'éclairement. Au-delà d'une largeur laser

de 0,15 cm^{-1}, cette distribution a atteint sa limite chaotique, comme en témoignent les largeurs des profils de résonance ; dès lors l'augmentation du nombre des modes laser ne joue plus que sur la largeur spectrale, ce qui explique pourquoi le rapport h entame alors sa décroissance.

Ce qui précède donne une bonne description qualitative des profils de résonance. Malheureusement, plusieurs problèmes nous interdisent de prétendre à un accord quantitatif ; tout d'abord, la valeur absolue du nombre d'ions produit ne pouvait être déterminé par le dispositif expérimental, alors que le calcul de ce nombre d'ions impliquerait la connaissance de la fréquence de Rabi à 3 photons, dont les valeurs publiées diffèrent de deux ordres de grandeur. En ce qui concerne les variations relatives du signal d'ions , les travaux théoriques disponibles sont basés sur un modèle de laser multimode à spectre lorentzien, dont le caractère peu réaliste a des conséquences non négligeables sur les profils de résonance calculés. Par ailleurs, aucun d'entre eux ne montre de possibilités de prise en compte des corrélations entre modes laser voisins.

Enfin, nous avons vu que pour calculer de façon réaliste un signal d'ions, il était impératif de prendre en compte les effets de l'inhomogénéité de l'éclairement dans le volume d'interaction. Au total, un calcul suffisamment réaliste, tenant compte d'une raie laser non-lorentzienne et de l'inhomogénéité de l'éclairement serait sans doute extrêmement lourd, et le calcul ab initio par exemple du facteur h nous semble donc une possibilité assez éloignée.

Par contre, on peut mentionner qu'une valeur approximative de h peut être obtenue par un calcul simple, si l'on accepte d'introduire dans le calcul la largeur mesurée expérimentalement du profil de résonance en monomode. Ceci peut être justifié par le fait que cette quantité est plus fonction du dispositif expérimental que de la physique fondamentale du phénomène.

Nous avons dit que le rapport des produits hauteur x largeur des profils de résonance en multimode et en monomode était expérimentalement de l'ordre de 6. Il est loisible de considérer le calcul en sens inverse : la notion de convolution du profil de résonance en bande nulle par le spectre effectif nous a donné une formule fournissant correctement les largeurs de

résonance en multimode, et d'autre part la valeur 6 est celle donnée par tous les modèles théoriques pour le rapport des aires.

On peut donc écrire une formule semi-empirique pour le calcul du rapport h :

$$h = 6 \times \frac{\text{largeur de résonance en monomode}}{\text{largeur de résonance en multimode}}$$

où seule la largeur de résonance en monomode est une quantité expérimentale. Avec un éclairement de 10^8 W/cm^2 et une largeur de raie laser de 0,15 cm^{-1}, on trouve ainsi une valeur h = 2,67, à comparer avec une valeur expérimentale de 2,5 ; la précision de l'accord est en partie fortuite, étant données les marges d'erreur de notre expérience. Cependant, l'ordre de grandeur du rapport h ainsi obtenu est en tout état de cause correct.

Concernant la modélisation des champs laser multimodes mis en oeuvre dans notre expérience par des processus aléatoires markoviens, nous avons eu l'occasion de montrer deux points. Sur le plan des résultats analytiques, l'apport des modèles markoviens est extrêmement précieux : on a vu qu'ils permettent, dans certains cas limites, de faire de façon particulièrement claire la distinction entre les effets de la statistique de l'éclairement et ceux de la largeur spectrale laser, et aussi de confirmer en bande large le facteur m! obtenu en bande nulle pour le rapport des aires des profils de résonance, ce qui donne à ce résultat toute sa valeur.

Sur le plan des résultats numériques, nous avons pu mettre en évidence certains désaccords du modèle lorentzien avec l'expérience, notamment sur la largeur des profils de résonance et le rapport R_α d'accroissement du décalage Stark effectif. Si l'on ne peut formellement exclure l'existence d'une valeur limite de 4 en bande large pour R_α, la convergence vers cette limite est certainement plus lente que prévue par les calculs. De toute façon, cette valeur limite de 4 ne pourrait être approchée, si elle l'était effectivement, que pour les largeurs de raie laser supérieures à 0,2 cm^{-1}, domaine où l'absence de structure hyperfine apparente, la grande largeur du profil de résonance et les fluctuations du signal d'ions se conjuguent pour rendre une mesure précise de R_α très difficile.

Une amélioration de l'accord avec l'expérience doit logiquement être attendue de la mise en oeuvre de processus markoviens plus sophistiqués, permettant de décrire de façon réaliste le spectre d'un laser expérimental. Il faut bien voir, toutefois, que cette conclusion assez restrictive sur la validité du modèle lorentzien ne peut prétendre à une validité générale : on peut en effet dire que le système physique que nous avons étudié (un système résonnant dont la dynamique est en fait dominée par des diagrammes non-résonnants) représentait sans doute un banc d'essai particulièrement exigeant pour une modélisation du champ laser multimode, et il est tout à fait plausible que pour des phénomènes optiques plus simples le modèle lorentzien soit entièrement satisfaisant.

APPENDICE A

On a rassemblé dans cet Appendice certaines données d'ordre mathématique concernant les processus aléatoires, afin d'alléger le texte principal.

A - PROPRIÉTÉS DU MODÈLE C.D.P. (équations (I.58) et suivantes)

On a :

$$\Delta(\tau) = \int_t^{t+\tau} \xi(t')\, dt' \tag{1}$$

Cette intégrale s'interprète comme une somme d'un nombre infini de variables aléatoires gaussiennes indépendantes, de moyenne nulle, de variances infinitésimales ; par conséquent, Δ est également une variable aléatoire gaussienne de moyenne nulle. Il suffit donc de calculer sa variance pour la déterminer entièrement :

$$\begin{aligned} \langle \Delta^2(\tau) \rangle &= \int_t^{t+\tau} \int_t^{t+\tau} \gamma_L \langle \xi(t')\, \xi(t'') \rangle\, dt'\, dt'' \\ &= \gamma_L \int_t^{t+\tau} \int_t^{t+\tau} \delta(t'-t)\, dt'\, dt'' = \gamma_L\, \tau \end{aligned} \tag{2}$$

La loi statistique de $\Delta(\tau)$ est donc donnée par :

$$P(\Delta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\, \gamma_L\, \tau}} \cdot \exp\left(-\Delta^2 / 2\, \gamma_L\, |\tau|\right) \tag{3}$$

On en déduit la valeur des fonctions de corrélation :

$$G^{(n,n)}(t, t+\tau) = \langle \epsilon^n(t)\ \epsilon^{*n}(t+\tau) \rangle$$

$$= |\epsilon_o|^{2n} \langle \exp(in\,\Delta(\tau)) \rangle$$

$$= \frac{|\epsilon_o|^{2n}}{\sqrt{2\pi\,\gamma_L\,|\tau|}} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-\Delta^2/2\,\gamma_L\,|\tau|)\,\exp(in\Delta)\,d\Delta$$

$$= |\epsilon_o|^{2n} \cdot \exp(-n^2\,\gamma_L\,|\tau|/2) \qquad (4)$$

La densité spectrale s'obtient grâce au théorème de Wiener-Khintchine :

$$P(\omega) = \frac{\varepsilon_o c}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i\,(\omega_o-\omega)\,\tau)\,G^{(1,1)}(t, t+\tau)\,d\tau$$

$$= \frac{\varepsilon_o c\,|\epsilon_o|^2}{\pi}\ \gamma_L\ \frac{1}{(\omega-\omega_o)^2 + \gamma_L^2/4} \qquad (5)$$

B - PROPRIÉTÉS DU MODÈLE C.G.L. (équations (I.63) et suivantes)

On intègre formellement, par la méthode de variation des constantes, l'équation (I.63). Il vient :

$$\epsilon(t+\tau) - \epsilon(t)\exp(-\gamma_L\,\tau/2) =$$

$$= \left(\frac{\gamma_L\,\varepsilon_o^2}{2}\right)^{1/2} \cdot \exp(-\gamma_L\,(t+\tau)/2) \int_t^{t+\tau} \exp\left(\frac{\gamma_L\,t'}{2}\right).\xi_c(t')\,dt' \qquad (6)$$

Par le même raisonnement que pour le modèle C.D.P., le second membre de cette égalité est une variable aléatoire gaussienne complexe, et sa variance vaut :

$$< \left| \epsilon(t+\tau) - \epsilon(t) \exp(-\gamma_L \tau/2) \right|^2 > =$$

$$= \frac{\gamma_L \epsilon_o^2}{2} \exp(-\gamma_L (t+\tau)) \int\int_t^{t+\tau} \exp(\gamma_L (t'+t'')/2) <\xi_c(t')\xi_c^*(t'')> dt' dt''$$

$$= \frac{\gamma_L \epsilon_o^2}{2} \exp(-\gamma_L (t+\tau)) \int_t^{t+\tau} 2 \exp(\gamma_L t') dt'$$

$$= \epsilon_o^2 (1 - \exp(-\gamma_L \tau)) \qquad (7)$$

La fonction de Green du processus ϵ , id est la densité de probabilité conditionnelle, vaut donc :

$$P(\epsilon, t+\tau | \epsilon_i, t) = \frac{1}{\pi\sigma^2(\tau)} \exp\{ - (\epsilon - \epsilon_i \exp(-\gamma_L \tau/2))^2 / \sigma^2(\tau) \} \qquad (8)$$

avec : $$\sigma^2(\tau) = \epsilon_o^2 (1 - \exp(-\gamma_L \tau)) \qquad (9)$$

La répartition stationnaire de probabilité de ϵ s'obtient en laissant tendre τ vers l'infini :

$$P(\epsilon, t) = \frac{1}{\pi \epsilon_o^2} \exp(- |\epsilon|^2 / \epsilon_o^2) \qquad (10)$$

Calculons maintenant la fonction de corrélation d'ordre 2 :

$$G^{(1,1)}(t, t+\tau) = \int P(\epsilon_i, \tau) \; P(\epsilon, t+\tau | \epsilon_i, t) \; \epsilon \epsilon_i^* \, d^2\epsilon \, d^2\epsilon_i \qquad (11)$$

L'intégrale est élémentaire et on trouve, tous calculs faits :

$$G^{(1,1)}(t, t+\tau) = \epsilon_o^2 \cdot \exp(-\gamma_L |\tau|/2) \tag{12}$$

Le calcul de la densité spectrale de puissance est alors strictement le même que pour le modèle C.D.P. :

$$P(\omega) = \frac{\varepsilon_o c \epsilon_o^2}{\pi} \cdot \frac{\gamma_L}{(\omega - \omega_o)^2 + \gamma_L^2/4} \tag{13}$$

On trouve facilement la fonction de corrélation d'ordre 2n à deux temps, grâce au théorème des moments, en partant de la fonction d'ordre 2 :

$$G^{(n,n)}(t, t+\tau) = n!\, \epsilon_o^{2n} \exp\left(-\frac{n \gamma_L |\tau|}{2}\right) \tag{14}$$

C - Etablissement des équations de Bloch optiques moyennées sur les fluctuations du laser C.D.P. (équation (III.56))

Le problème est équivalent à une équation du type :

$$\frac{dX}{dt} = A.X + L.X \tag{15}$$

où X est un vecteur aléatoire, A une matrice déterministe et L une matrice dont les éléments sont des forces de Langevin à corrélation microscopique. On dit que X est un processus aléatoire multiplicatif. On pose :

$$\langle L_{ij}(t)\, L_{kl}(t+\tau) \rangle = Q_{ijkl}\, \delta(\tau) \tag{16}$$

$$R_{ij} = \sum_k Q_{ikkj} \tag{17}$$

Alors un théorème de la théorie des processus aléatoires multiplicatifs fournit l'équation d'évolution de la moyenne de X :

$$\frac{d}{dt} \langle X \rangle = A \langle X \rangle + R \langle X \rangle \tag{18}$$

Preuve : Cf. Fox, J. Math. Phys., 13, 1196 (1972).

APPENDICE B

On se propose ici de justifier l'emploi d'équation de type (III.12) lorsque le dénominateur est quasi-résonnant ; on a en effet signalé que la justification donnée dans le texte est alors inadéquate.

Reprenons, par exemple, l'équation (III.11.a) :

$$\dot{\sigma}_{11}^{(1)} + (i\,(\omega + \omega_1 - \omega_1) + (\gamma_1 + \gamma_1)/2)\,\sigma_{11}^{(1)} = -\,i\,\mu_{11}\,\epsilon(t)\,\sigma_{11}^{(0)} \qquad (1)$$

Posons, pour simplifier, l'écriture :

$$s = \omega + \omega_1 - \omega_1 \qquad \sigma_{11}^{(1)} = \sigma_s\,(t)$$

$$\varepsilon = \frac{1}{2}\,(\gamma_1 + \gamma_1) \quad \text{et} \quad \psi_t(s) = -\,i\,\mu_{11}\,\epsilon(t)\,\sigma_{11}^{(0)}(t) \qquad (2)$$

On écrit alors :

$$\dot{\sigma}_s + (is + \varepsilon)\,\sigma_s = \psi_t(s) \qquad (3)$$

Or, on ne cherche en fait à évaluer que des intégrales du type :

$$S(t) = \int \sigma_s\,(r)\,\phi\,(s)\,ds \qquad (4)$$

où ϕ (s) est une fonction lentement variable de s (qui s'annule dans le continuum d'ionisation).

L'intégration brutale de (4) par la méthode donnant (III.12.a) donne :

$$S(t) = \int \frac{\psi_t(s)}{is + \varepsilon} \phi\ (s)\ ds \tag{5}$$

D'autre part, l'intégration formelle de (3) donne :

$$S(t) = \int ds \int_o^t dt'\ e^{(is+\varepsilon)\ (t-t')}\ \psi_{t'}(s)\ \phi(s)\ ds = \tag{6}$$

$$= \int ds \int_{-t}^{o} d\theta\ e^{(is+\varepsilon)\theta}\ \psi_{t-\theta}\ (s)\ \phi\ (s)\ ds \tag{7}$$

Or ϕ et ψ ne changent sensiblement que pour des variations de ω_1 de l'ordre de 10^{13} Hz, alors que typiquement la dépendance en t de ψ est sensible pour des temps de l'ordre de 10^{-10} s. Dans ces conditions, la présence du facteur oscillant dans l'intégrale (7) permet d'y remplacer $\psi_{t-\theta}$ (s) par ψ_t (s) ; il vient donc :

$$S(t) \cong \int ds\ \phi\ (s)\ \psi_t\ (s) \int_{-t}^{o} d\theta\ e^{(is+\varepsilon)\theta} \tag{8}$$

Pour des temps pas trop courts ($t >> 10^{-13}$ s) on voit qu'on peut remplacer dans (8) l'intégrale en θ par la transformée de Fourier de la fonction d'Heaviside :

$$S(t) \cong \int ds\ \psi_t\ (s)\ \phi\ (s)\ (\pi\delta\ (s) - i\ P/s) \tag{9}$$

Or, du fait que $\varepsilon << 10^{13}$ Hz, l'équation (5) est pratiquement identique à ce dernier résultat.

Q.E.D.

BIBLIOGRAPHIE

/ 1 / M. Göppert-Mayer : Ann. der Phys., 9, 273 (1931).

/ 2 / J.M. Winter : Ann. de Phys., 4, 745 (1959).

/ 3 / A.L. Schawlow and C.H. Thomas : Phys. Rev., 112, 1940 (1958).

/ 4 / T.H. Maiman : Nature, 187, 493 (1960).

/ 5 / W. Kaiser, C.G.B. Garrett : Phys. Rev. Lett., 7, 229 (1961).

/ 6 / I.D. Abella : Phys. Rev. Lett., 9, 453 (1962).

/ 7 / J.A. Giordmaine : Phys. Rev. Lett., 11, 207 (1963).

/ 8 / B. Cagnac, G. Grynberg, F. Biraben : J. de Phys., 34, 845 (1973).

/ 9 / L.V. Keldysh : J. Exp. Teor. Fiz., 47, 1945 (1964).

/ 10 / S. Geltman : Phys. Lett., 4, 168 (1963).

/ 11 / N.B. Delone, G.S. Voronov : Pisma J. Exp. Teor. Fiz., 1, 42 (1965).

/ 12 / A.M. Bonch-Bruevitch, V.A. Khodovoĭ : Usp. Fiz. Naouk, 85, 3 (1965).

/ 13 / J.S. Bakos : Adv. in Electron. Electron. Phys., 36, 57 (1974).

/ 14 / P. Lambropoulos : Adv. at. mol. Phys., 12, 87 (1976).

/ 15 / G. Mainfray, C. Manus : Proc. of the 4th E.P.S. Gen. Conf. (1979).

/ 16 / P. Lambropoulos : Adv. in Electron. Electron. Phys., 54, 191 (1980).

/ 17 / J. Morellec, D. Normand, G. Petite : Adv. At. Mol. Phys., 18, 97 (1982).

/ 18 / G.S. Voronov, N.B. Delone : J. Exp. Teor. Fiz., 50, 78 (1966).

/ 19 / G.S. Voronov, G.A. Delone, N.B. Delone : J. Exp. Teor. Fiz., 51, 1660 (1966).

/ 20 / a) P. Agostini, G. Barjot, J.F. Bonnal, G. Mainfray, C. Manus, J. Morellec : I.E.E.E. J. of Q.E., 4, 667 (1968).

b) P. Agostini, J.F. Bonnal, G. Mainfray, C. Manus : C.R. Acad. Sc., B 266, 1034 (1968).

c) P. Agostini, G. Barjot, G. Mainfray, C. Manus, J. Thebault : Phys. Lett. A, 31, 367 (1970).

d) P. Agostini, G. Barjot, G. Mainfray, C. Manus, J. Thébault : C.R. Acad. Sc., B 270, 1566 (1970).

e) P. Agostini, G. Barjot, G. Mainfray, C. Manus, J. Thébault : I.E.E.E. J. of Q.E., 6, 782 (1970).

/ 21 / a) B. Held, G. Mainfray, C. Manus, J. Morellec : Phys. Lett. A, 35, 257 (1971).

b) B. Held, G. Mainfray, J. Morellec : Phys. Lett. A, 39, 57 (1972).

c) B. Held, G. Mainfray, C. Manus, J. Morellec, F. Sanchez : Phys. Rev. Lett., 30, 423 (1973).

/ 22 / a) H.B. Bebb, A. Gold : Phys. Rev. Lett., 14, 60 (1965).

b) H.B. Bebb, A. Gold : Phys. Rev., 143, 1 (1966).

c) H.B. Bebb : Phys. Rev., 149, 25 (1966).

d) H.B. Bebb : Phys. Rev., 153, 23 (1967).

/ 23 / a) W. Zernik : Phys. Rev. A, 135, 51 (1964).

b) W. Zernik : Phys. Rev. A, 176, 420 (1968).

/ 24 / a) Y. Gontier, M. Trahin : Phys. Rev., 172, 83 (1968).

b) Y. Gontier, M. Trahin : C.R. Acad. Sc., B 266, 1177 (1968).

c) Y. Gontier, M. Trahin : Phys. Rev. A, 4, 1896 (1971).

d) Y. Gontier, M. Trahin : Phys. Rev. A, 7, 1899 (1973).

/ 25 / G.S. Agarwal : Phys. Rev. A, 1, 1445 (1970).

/ 26 / G. Baravian, R. Benattar, J. Bretagne, J.L. Godart, G. Sultan : Appl. Phys. Lett., 16, 162 (1970).

/ 27 / G. Baravian, R. Benattar, J. Bretagne, G. Callede, J.L. Godard, G. Sultan : Appl. Phys. Lett., 18, 387 (1971).

/ 28 / J.L. Debéthune : Nuov. Cim., 12 B, 101 (1972).

/ 29 / M. Lu Van, G. Mainfray, C. Manus, I. Tugov : Phys. Rev. A, 7, 91 (1973).

/ 30 / A.J. Alcock, C. De Michelis, M.C. Richardson : I.E.E.E. J. of Q.E. : 6, 622 (1970).

/ 31 / C. Lecompte, G. Mainfray, C. Manus, F. Sanchez : Phys. Rev. Lett., 32, 265 (1974).

/ 32 / C. Lecompte, G. Mainfray, C. Manus, F. Sanchez : Phys. Rev. A, 11, 1009 (1975).

/ 33 / F. Sanchez
a) Nuov. Cim., 27B, 305 (1975).
b) J. de Phys. Lett., 39, L35 (1978).

/ 34 / A. Blanc-Lapierre, B. Picinbono : Fonctions aléatoires (Masson, Paris 1981).

/ 35 / R.S. Liptser, A.N. Shyryaiev : Statistics of Random Processes (Springer Verlag, Berlin 1977).

/ 36 / R.L. Stratonovitch : Topics in the Theory of Random Noise, T.1 (Gordon and Breach, New York 1963).

/ 37 / R.J. Glauber : C.R. de l'Ecole d'Eté des Houches (1964) (Gordon and Breach, New York 1965).

/ 38 / R.J. Glauber : Phys. Rev., 130, 2529 (1963).

/ 39 / R. Hanbury-Brown, R.Q. Twiss : Nature, 177, 27 (1956).

/ 40 / H. Haken, H. Sauermann : Zeit. Phys., 173, 261 (1963).

/ 41 / H. Haken : Encyclopedia of Physics, T. XXV/2-c (Springer Verlag, Berlin 1970).

/ 42 / H. Risken : Zeit. Phys., 186, 85 (1965).

/ 43 / A. Yariv : Quantum Electronics (John Wiley & Sons, New York, 1975).

/ 44 / T.K. Caughey : A.S.M.E. J. of Appl. Mech., 81, 345 (1959).

/ 45 / J.J. Sakurai : Advanced Quantum Mechanics (Addison Wesley, London 1967).

/ 46 / R.J. Glauber : Phys. Rev., 131, 2766 (1963).

/ 47 / F.T. Arrechi : Proc. of the International Summer School "Enrico Fermi" (Academic Press, New York 1969).

/ 48 / E.C.G. Sudarshan : Phys. Rev. Lett., 10, 277 (1963).

/ 49 / L. Schwartz : Théorie des Distributions (Hermann, Paris 1978).

/ 50 / J.J. Yeh, J.H. Eberly : Phys. Rev. A, 24, 888 (1981).

/ 51 / P. Zoller : J. Phys. B, 15, 2911 (1982).

/ 52 / J. Morellec, D. Normand, G. Petite : Phys. Rev. A, 14, 300 (1976).

/ 53 / J. Morellec, D. Normand, G. Petite : J. de Phys., T 40 n° 2, 115 (1979).

/ 54 / F. Sanchez, C. Lecompte : Appl. Opt., 13, 1071 (1974).

/ 55 / G. Petite : J. Appl. Phys., 46, 3462 (1975).

/ 56 / C. Cohen-Tannoudji : Cargèse Lectures in Physics, V.2, 347 (1967) (Gordon and Breach, New York, 1967).

/ 57 / C. Cohen-Tannoudji : Mécanique Quantique, T.2 (Hermann, Paris 1979).

/ 58 / T.U. Arslanbekov : Sov. J. of Q.E., 6, 117 (1976).

/ 59 / L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus : J. Phys. B, 13, 85 (1980).

/ 60 / M.L. Golberger, M.W. Watson : Collision Theory (John Wiley and Sons, New York 1964).

/ 61 / Y. Gontier, M. Trahin : Phys. Rev. A, 19, 264 (1979).

/ 62 / A.T. Georges, P. Lambropoulos, J.H. Marburger : Phys. Rev. A, 15, 300 (1977).

/ 63 / A.T. Georges : Adv. in Electronics and Electron. Phys., 54, 191 (1980).

/ 64 / P. Agostini, A.T. Georges, S.E. Wheatley, P. Lambropoulos, M.D. Levenson : J. Phys. B, 11, 1733 (1978).

/ 65 / P. Zoller : J., Phys. B, 13, 69 (1980).

/ 66 / M. Crance : J. Phys. B, 11, 1931 (1978).

/ 67 / V.A. Kovarski, N.F. Perelman : Sov. Phys. J.E.T.P., 41, 226 (1975).

/ 68 / L. Armstrong, P. Lambropoulos, N.K. Rahman : Phys. Rev. Lett., 36, 952 (1976).

/ 69 / J. Mostowski : Phys. Lett., 56 A, 87 (1976).

/ 70 / F. Sanchez : J. de Phys. Lett., T.39, L.35 (1978).

/ 71 / Y. Gontier, M. Trahin : J. Phys. B, 12, 2123 (1979).

/ 72 / L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, J.P. Marinier : J. Phys. B, 14, 4307 (1981).

/ 73 / G.S. Agarwal : Phys. Rev. A, 18, 1490 (1978).

/ 74 / P. Zoller : Phys. Rev. A, 19, 1151 (1979).

/ 75 / Van Kampen : Phys. Rep., 24, 171 (1976).

/ 76 / P. Zoller : Phys. A, 20, 1019 (1979).

/ 77 / P. Zoller : Phys. Rev. A, 20, 2420 (1979).

/ 78 / J. Morellec, D. Normand : J. Phys. B, 13, 1551 (1980).

/ 79 / R.B. Chesler, G.E. Geusic : Laser Handbook, T.1 (North-Holland, Amsterdam 1972).

/ 80 / M.J. Weber : Methods of Experimental Physics, T. 15 A (Academic Press, New York 1979).

/ 81 / D.C. Hanna : Opto-Electronics, 3, 163 (1971).

/ 82 / K.H. Drexhage, U.T. Muller-Westerhoff : I.E.E.E. J. of Q.E., 8, 759 (1972).

/ 83 / H. Kogelnik, T. Li : Appl. Opt., 5, 1550 (1966).

/ 84 / M. Born, E. Wolf : Principles of Optics (Pergamon Press, New York 1980).

/ 85 / D. Miller, S. Smith : Appl. Opt., 17, 3804 (1980).

/ 86 / L.A. Lompré, G. Mainfray, J. Thébault : Revue de Physique Appliquée, 17, 21 (1982).

/ 87 / L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, J.P. Marinier : Phys. Lett., 86 A, 17 (1981).

/ 88 / G.N. Watson : Theory of Bessel Functions (Cambridge University Press, 1958).

APPENDICE C

STARK SHIFT ENHANCEMENT IN RESONANT MULTIPHOTON IONIZATION BY INCOHERENT LASER PULSES

L.A. LOMPRE, G. MAINFRAY, C. MANUS and J.P. MARINIER
Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, Service de Physique Atomique, 91190 Gif-sur-Yvette, France

Received 30 June 1981

Laser temporal-coherence effects are investigated in four-photon ionization of cesium atoms when the Nd-glass laser frequency is tuned to the resonant three-photon transition 6S → 6F. It is shown experimentally for the first time that resonance shift with incoherent laser pulses is enhanced by a factor 2.8 ± 0.2 compared to the shift with coherent pulses.

Resonance effects in multiphoton ionization of atoms have been carefully investigated with coherent laser pulses in the past few years [1,2]. A good analysis of these effects is important in order to understand resonance effects in multiphoton excitation, dissociation and ionization of molecules which are more complicated and far from being understood. Laser-induced atomic level shifts play a very important role in resonant multiphoton ionization of atoms and have two important consequences. Firstly, in the close vicinity of the resonance, they induce a non-linear intensity dependence of the multiphoton ionization rate with a non-linear order K which is very different from the order N for the non-resonant N-photon ionization process [3]. Secondly, they induce a shift in resonance profiles [1–4]. An example has been investigated in detail in the literature: the four-photon ionization of cesium atoms with a coherent Nd-glass laser pulse when the laser frequency is tuned on to the resonant three-photon transition 6S → 6F [1–4]. The resonance shift Δ is a linear function of the laser intensity I, $\Delta = \alpha I$. The experimental value $\alpha = 2$ cm^{-1}/GW cm^{-2} is in very good agreement with calculations [5,6]. During the last few years, the problem of resonant multiphoton ionization in a multimode laser field has received considerable theoretical interest [7–16]. Especially, a significant enhancement of the resonance shift was predicted by several authors [7–10] if incoherent laser pulses were used. The purpose of the present letter is to investigate this effect experimentally for the first time, and to measure the enhancement factor, by using a laser which can be operated either single-mode or multi-mode. Until now, the effect of laser temporal-coherence has been observed only on non-resonant ionization processes [17].

The statistical enhancement of resonance shift is investigated through the example of the four-photon ionization of cesium atoms, using a Nd-glass laser pulse and tuning the frequency on to the resonant three-photon transition 6S → 6F close to 9443 cm^{-1}. The laser used in the present experiment will be described in detail in another paper [18]. Briefly, it is a tunable-wavelength Q-switched Nd-glass laser which can be operated either multi-mode or single-mode. The multi-mode oscillator contains a higly dispersive glass prism and a 4 mm thick calcite plate which is Brewster tilted with neutral lines at 45° of laser polarization. The laser bandwidth can be varied between 3×10^{-2} and 0.15 cm^{-1}. Two adjacent longitudinal modes are separated by 5×10^{-3} cm^{-1}. In order to obtain reproducible single longitudinal mode operation, we use the superposition of the mode structures of the main multi-mode cavity, a subcavity and a Fabry–Pérot etalon which consists of a 10 mm thick glass plate. The length of the main cavity is four times the length of the subcavity [19]. The laser radiation is linearly polarized; the pulse duration is 46 ns, and the wavelength can be tuned by steps of 2×10^{-2} Å. The wavelength mea-

0 031-9163/81/0000–0000/$ 02.75 © 1981 North-Holland

surements are made with both a spectrograph and a Fabry–Pérot interferometer by measuring the diameter of the rings [19]. As is well known, when the laser operates in a single mode, no intensity fluctuation occurs, while in multi-mode operation, the beating between adjacent modes modulates the intensity and gives peak intensities. In multi-mode operation, we measure a time averaged intensity $\bar{I}$ by using a photodiode and an oscilloscope whose combined rise time is very long to integrate deliberately intensity fluctuations.

Resonant multiphoton ionization of cesium atoms with single-mode or multi-mode laser pulses is performed by using an experimental arrangement identical to the one employed in previous work [2–4]. Briefly, the laser pulse is amplified and passes through a spatial filter. It is then focussed by a planocylindrical lens of 50 cm focal length into a vacuum pyrex cell where the atomic density is 6×10^{10} cm^{-3}. The section of the focal region is measured to be $(3 \pm 0.2) \times 10^{-3}$ cm^2. The ions resulting from the laser interaction with atoms at the focal volume are extracted with a transverse electric field of 500 V cm^{-1}, separated by a time of flight spectrometer and then detected with an electron multiplier 10–10^4 ions are generally collected.

The experiment consists of measurements of the number of ions formed as a function of the laser frequency in the neighbourhood of the resonant three-photon transition 6S → 6F, for a fixed laser intensity $\bar{I}$. Fig. 1 shows four typical resonance profiles obtained for four different laser intensities, with an incoherent laser pulse which has a bandwidth of 3×10^{-2} cm^{-1} (fwhm). The intensity distribution of the modes is approximatively gaussian. Experimental points have been omitted to make the figure clearer. Curves a and b at low laser intensity show four resonance peaks due to a 0.3 cm^{-1} hyperfine structure of the 6S ground state of the Cs atom and to a 0.1 cm^{-1} fine structure of the 6F resonant state. When the laser intensity is increased, the fine structure is no longer resolved due to an intensity dependent broadening. Fig. 1 clearly demonstrates a shift in the resonance profiles when the laser intensity is increased from 1.4 to 5.7×10^7 W cm^{-2}. The arrow indicates the central frequency position of the three-photon transition 6S → 6F derived from spectroscopic tables. The resonance shift Δ is linear with respect to the laser intensity, $\bar{I}$, $\Delta = \beta \bar{I}$ with $\beta = (5.6 \pm 0.3)$ cm^{-1}/GW cm^{-2}, when β is expressed in terms of energy of the three-photon transition 6S → 6F. This resonance shift obtained with multi-mode laser pulses is significantly larger than the corresponding resonance shift obtained with coherent laser pulses and for which $\Delta = \alpha I$, with $\alpha = 2$ cm^{-1}/GW cm^{-2}. This result clearly shows that the resonance shift is enhanced by photon-correlation effects when an incoherent laser pulse is used.

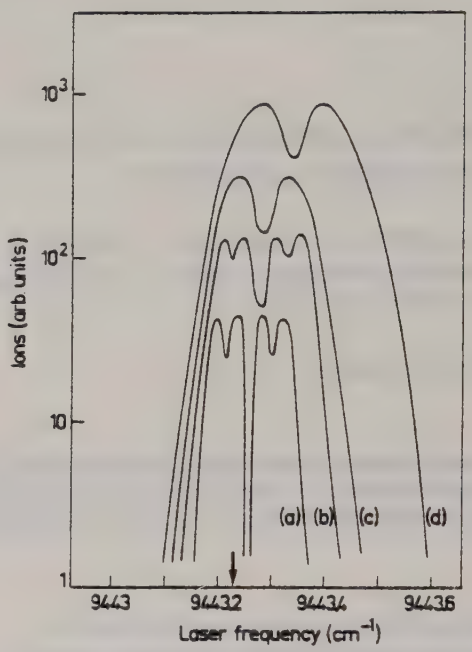


Fig. 1. Variation of the number of atomic cesium ions as a function of the laser frequency in vacuum in the neighbourhood of the three-photon transition 6S → 6F. Laser bandwidth 3×10^{-2} cm^{-1}. Laser intensity: (a) 1.4×10^7 W cm^{-2}; (b) 2×10^7 W cm^{-2}; (c) 3.2×10^7 W cm^{-2} and (d) 5.7×10^7 W cm^{-2}.

The statistical enhancement of the resonance shift is directly shown in fig. 2. This figure gives two resonance profiles obtained at the same laser intensity $\bar{I} = 5.6 \times 10^7$ W cm^{-2} with a coherent laser pulse and an incoherent laser pulse which has a bandwidth of 0.1 cm^{-1} (fwhm). In the resonance profile obtained with the multi-mode laser pulse, the 6F fine structure is not resolved because the laser bandwidth is larger. The important result of fig. 2 is the additional shift induced by the incoherent laser pulse. This additional shift is $(6.6 \pm 0.5) \times 10^{-2}$ cm^{-1} expressed in laser frequency units, i.e. $(2 \pm 0.15) \times 10^{-1}$ cm^{-1} in terms of energy of the three-photon transition 6S → 6F. Furthermore, fig. 2 clearly shows an enhancement in the

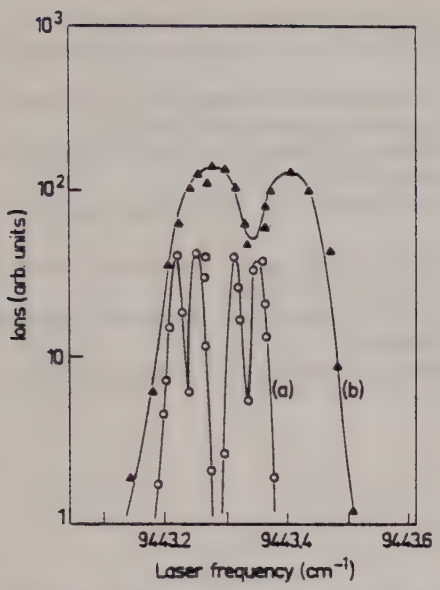


Fig. 2. Resonance profiles obtained with (a) a single-mode laser pulse, and (b) a multi-mode laser pulse which has a bandwidth of 0.1 cm^{-1}. The laser intensity for both profiles is 5.6×10^7 W cm^{-2}.

resonance width and in the amplitude of the resonance profile obtained with the incoherent laser pulse. These effects will be analyzed in a forthcoming paper [18].

Fig. 3 shows the two laws of variation of the resonance shift Δ, as a function of the laser intensity, with a coherent and an incoherent laser pulse. Δ is expressed in terms of energy of the three-photon transition $6S \rightarrow 6F$. The difference between the two lines gives the additional shift due to the laser intensity fluctuations, i.e. (3.6 ± 0.3) cm^{-1}/GW cm^{-2}. This experimental result is in excellent agreement with a previous calculation [8]. Fig. 3 shows that the resonance shift obtained with incoherent laser pulses is enhanced by factor of 2.8 ± 0.2 compared to the shift obtained with coherent pulses. All these values do not significantly change when the laser bandwidth is varied from 3×10^{-2} cm^{-1} to 0.15 cm^{-1}.

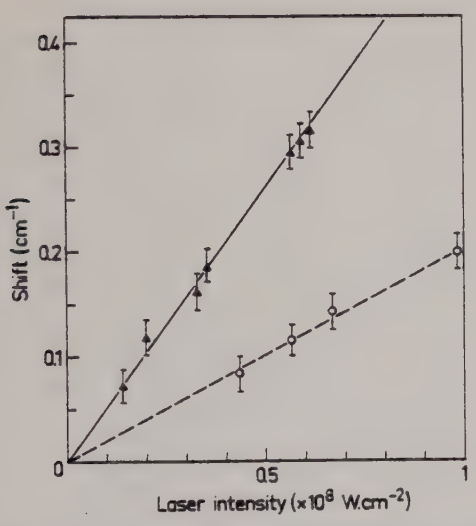


Fig. 3. Resonance shift expressed in terms of energy of the three-photon transition $6S \rightarrow 6F$, as a function of the laser intensity, for a single-mode laser pulse (dashed line) and an incoherent laser pulse (solid line).

As far as comparison with theory is concerned, there are two kinds of calculations within the zero-bandwidth [8] and the large-bandwidth [10] limit according to whether the laser bandwidth is smaller or larger, respectively, than the coherent Stark shift, the bound–bound coupling and the ionization width. Neither case can be said to apply rigorously here, according to the numerical values generally adopted for the relevant physical parameters [2]. Modellization of the electric field amplitude by a gaussian Markov process allows in principle the treatment of arbitrary bandwidths [10,11], but no calculation of that kind is yet available that could be compared to our experiment. For the large-bandwidth limit, the statistical shift enhancement factor is an increasing function of the laser bandwidth reaching asymptotically a value of 4 according to the calculation [10] adapted to the four-photon ionization process. Another zero-bandwidth limit calculation [8] gives a statistical shift enhancement factor identical to our experimental value.

The important conclusion is that the statistical enhancement of resonance shift predicted by theoretical calculations has been clearly demonstrated in the present paper. Furthermore, from theoretical calculations [8–10], the statistical enhancement factor is expected to increase with the order N of the N-photon ionization process. Consequently, the statistical enhancement of resonance shift could play an important role in the resonant multi-photon dissociation and ionization of molecules where large N values can take place.

References

[1] V.A. Grinchuk, G.A. Delone and K.B. Petrosyan, Fiz. Plazmy 1 (1975) 320 [Sov. J. Plasma Phys. 1 (1975) 172].

[2] G. Petite, J. Morellec and D. Normand, J. Physique 40 (1979) 115.
[3] J. Morellec, D. Normand and G. Petite, Phys. Rev. A14 (1976) 300.
[4] L.A. Lompre, G. Mainfray, C. Manus and J. Thebault, J. Physique 39 (1978) 610.
[5] Y. Gontier and M. Trahin, J. Phys. B11 (1978) L131.
[6] M. Crance, J. Phys. B11 (1978) 1931.
[7] J. Mostowski, Phys. Lett. 56A (1976) 87.
[8] Y. Gontier and M. Trahin, J. Phys. B12 (1979) 2123.
[9] S.N. Dixit and P. Lambropoulos, Phys. Rev. A27 (1980) 168.
[10] P. Zoller and P. Lambropoulos, J. Phys. B13 (1980) 69.
[11] P. Zoller, Phys. Rev. A19 (1979) 1151.
[12] F. Sanchez, J. Physique Lett. 39 (1978) L35.
[13] P. Agostini, A.T. Georges, S.E. Wheatley, P. Lambropoulos and M.D. Levenson, J. Phys. B10 (1978) 1733.
[14] V.A. Kovarskii, N.F. Perelman and S.S. Todirashku, Sov. J. Quantum Electron. 8 (1976) 980.
[15] L. Armstrong, P. Lambropoulos and N.K. Rahman, Phys. Rev. Lett. 36 (1976) 952.
[16] J.L.F. de Meijere and J.H. Eberly, Phys. Rev. A17 (1978) 1416.
[17] C. Lecompte, G. Mainfray, C. Manus and F. Sanchez, Phys. Rev. A3 (1975) 1009.
[18] L.A. Lompre, G. Mainfray, C. Manus and J.P. Marinier, to be published.
[19] J. Morellec, D. Normand and G. Petite, Appl. Opt. 18 (1979) 141.

APPENDICE D

J. Phys. B: At. Mol. Phys. **14** (1981) 4307–4326. Printed in Great Britain

Laser light statistics and bandwidth effects in resonant multiphoton ionisation of caesium atoms at 1.059 μm

L-A Lompré, G Mainfray, C Manus and J P Marinier

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, Service de Physique Atomique, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

Received 18 June 1981

Abstract. Laser temporal-coherence effects are investigated in four-photon ionisation of caesium atoms using a tunable wavelength Nd-glass laser pulse and tuning the frequency onto the resonant three-photon transition 6S→6F. The laser can be operated in either single or multimode. In the latter case, the laser bandwidth can be varied between 3×10^{-2} and 1.5 cm^{-1}. The resonance peaks obtained with incoherent laser pulses are enhanced, shifted and broadened with respect to those induced by coherent puises with the same average intensity. The resonance shift induced with incoherent laser pulses is statistically enhanced by a factor of 2.8 ± 0.2 compared with the shift induced by coherent pulses, in good agreement with calculations. The resonant multiphoton ionisation rate induced by multimode pulses depends both on intensity and bandwidth effects. It is enhanced by a factor of 2.5 for pulses with bandwidths less than 0.2 cm^{-1}, while it becomes smaller than that induced with a coherent pulse of the same intensity when the bandwidth becomes larger than 1 cm^{-1}. Finally, the resonance width depends both on intensity and bandwidth effects. At low intensity (2×10^{7} W cm^{-2}) it is governed only by the laser bandwidth, while at high intensity (10^{8} W cm^{-2}) it varies linearly with the intensity and is statistically enhanced.

1. Introduction

Many aspects of multiphoton ionisation of atoms are well understood now, and some of them are well explained by rigorous theoretical models. For example, accurate measurements of absolute values of two-, three- and four-photon ionisation cross sections (Lompré *et al* 1980b, Normand and Morellec 1980, Morellec *et al* 1980) are in good agreement with calculated values (Teague *et al* 1976, Olsen *et al* 1978, Rachman *et al* 1978, Aymar and Crance 1979, 1980) and clearly emphasise the validity of perturbation theory. There is also a very good agreement between theoretical (Gontier and Trahin 1979a, Crance and Aymar 1979) and experimental (Lompré *et al* 1978, Normand *et al* 1978, Petite *et al* 1979) results on resonance effects in multiphoton ionisation of caesium atoms in the laser intensity range 10^{7}–10^{9} W cm^{-2}. These measurements were performed using a coherent laser pulse, either single mode from a *Q*-switched laser, or a bandwidth-limited pulse from a mode-locked laser. Lastly, laser temporal-coherence effects increase the non-resonant *N*-photon ionisation rate by *N*!, in agreement with theoretical calculations (Ducuing and Bloembergen 1964, Lambropoulos *et al* 1966, Debéthune 1972, Sanchez 1975). For example, the non-resonant eleven-photon ionisation rate of xenon induced by an incoherent Nd-glass laser pulse is enhanced by 10^{7} over that induced by a single-mode pulse of the same average intensity (Lecompte *et al* 1975). Likewise, the non-resonant five-photon ionisation rate of Na

0022-3700/81/224307+20$01.50 © 1981 The Institute of Physics

with an incoherent laser pulse is more efficient by a factor of 110 than that encountered with a single-mode laser pulse (Arslanbekov 1976).

There is still one question which remains largely unanswered: laser temporal-coherence effects in resonant multiphoton ionisation. In the past few years, a number of authors have investigated this problem theoretically (Kovarsky *et al* 1976, Mostowski 1976, Armstrong *et al* 1976, Sanchez 1978, Agostini *et al* 1978). It is only very recently that specific calculations have been performed (Gontier and Trahin 1979b, Dixit and Lambropoulos 1980, Zoller and Lambropoulos 1980). Combined resonance and coherence effects are expected to be very difficult to investigate experimentally for two reasons. Firstly, such an experiment requires a very sophisticated laser to change both wavelength and temporal coherence by varying the number of longitudinal modes. Secondly, photon statistics of the laser radiation are relatively unimportant in a non-resonant two-photon ionisation process since they contribute a factor of two at the most, whereas they have a dramatic effect ($N!$) for a non-resonant N-photon ionisation process with a high-order N. On the contrary, resonance effects play a dominant role in N-photon ionisation processes with a small-order N in the low laser intensity range (10^7–10^9 W cm^{-2}), whereas their role is minimised at high laser intensity for large N values. For example, in twelve-photon ionisation of krypton at 10^{13} W cm^{-2} resonance effects are so highly damped that no resonance profile can be observed (Lompré *et al* 1980a). This flattening and disappearance of resonance profiles arises from the very strong coupling of the resonant state with the continuum due to high laser intensity (Mainfray and Manus 1980). Therefore, the four-photon ionisation of caesium atoms with a three-photon resonance on the 6F level in the laser intensity range 10^7–10^8 W cm^{-2} seems to be an adequate method for investigating the effect of photon correlations in resonant multiphoton ionisation. In addition, corresponding resonance profiles are well known with a coherent laser pulse (Petite *et al* 1979, Lompré *et al* 1978), and calculations can be carried out with a high degree of accuracy for Cs atoms.

In this paper, investigations into alterations occurring in the characteristics of resonance profiles in four-photon ionisation of Cs, with a three-photon resonance on the 6F level, are described. A Q-switched Nd-glass laser pulse with coherence modifications from a single-mode to a multimode pulse with a bandwidth b up to 1.5 cm^{-1} is employed. The tunable-wavelength Nd-glass laser pulse has a duration of 50 ns.

2. Experimental method

2.1. The laser system

2.1.1. General features. In order to measure the relative efficiency of ion production by multimode and single-mode laser light, the physical parameters of the laser, other than temporal coherence (and especially geometrical properties of the beam) must change as little as possible when passing from a multimode to a single-mode laser beam. Accordingly, we have designed a passively Q-switched, multimode tunable Nd^{3+}-glass laser oscillator, which can be made single mode simply by inserting supplementary wavelength selectors into the cavity while the basic geometrical features of this cavity remain the same.

The amplifying medium is an Owens Illinois ED2 silicate Nd^{3+}-glass rod, Brewster tilted, 130 mm long and 9 mm in diameter. It lies at the common focal axis of two reflecting semi-elliptical cylinders, with two linear flash lamps lying at the remaining

two focal axes. This configuration ensures that lasing is largely limited to the TEM-00 mode, since the centre of the rod is pumped preferentially. The number of longitudinal modes lying in a given bandwidth is proportional to the length of the cavity, so that longer cavities are best suited to produce a large number of modes in narrow-bandwidth incoherent light. On the contrary, short cavities produce single-mode light more efficiently, because of the larger free spectral range (FSR). The best compromise was found empirically to lie at an optical cavity length of $L = 1$ m.

2.1.2. The multimode oscillator. The design of the multimode cavity, as shown in figure 1, is derived from Lompré *et al* (1977). It is defined by a totally reflecting, 5 m radius spherical mirror M_1, a highly dispersive glass prism, the Nd^{3+}-glass rod and a plane, 65% reflecting output mirror M_2. Single transverse mode operation is achieved by means of a 1.5 mm diameter pinhole, placed between the prism and the laser rod. The laser is Q-switched by a saturable absorber cell (BDN in dichlororethane solvent) (Drexhage and Muller-Westerhoff 1972, Petite 1975) which lies in front of the totally reflecting mirror, and is Brewster tilted.

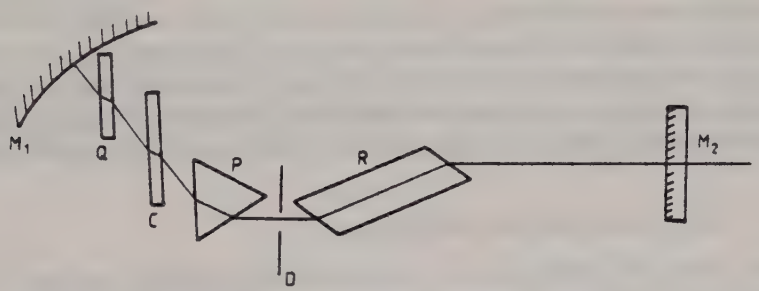


Figure 1. Schematic diagram of the tunable-wavelength Q-switched multimode Nd-glass oscillator. M_1, total reflection mirror; Q, Q-switch dye cell; C, calcite plate; P, high-index prism; D, 1.5 mm pinhole; R, Nd-glass laser rod; M_2, 65% reflection output mirror.

The linewidth of the oscillator described above is about 2 Å; this is, however, still too great for a resonant multiphoton ionisation experiment. In order to reduce the linewidth to 0.1 Å, another wavelength selector is added; this is a 4 mm thick calcite plate, which is Brewster tilted, with neutral lines at 45° of laser polarisation (Soep 1970, Sanchez and Lecompte 1974). The 15 Å FSR of this plate ensures that laser operation occurs only at one of its transmission peaks, namely the one closest to the wavelength obtained with the prism and mirrors alone. Wavelength tuning is achieved by rotating the calcite plate around an axis normal to its faces. One can choose the relevant transmission peak by rotating mirror M_1 around a vertical axis.

2.1.3. The single-mode oscillator. In order to obtain single longitudinal mode operation, a sub-cavity is created by inserting a 4° tilted 10 mm thick glass plate between the output mirror and the laser rod (figure 2) (Morellec *et al* 1979). The optical length of this sub-cavity, defined by the output mirror and the collimated face of the tilted plate, is set at $\frac{1}{4}L = 25$ cm. It then follows from classical calculations that an additional loss is created; this is a periodic function of the wavenumber with period $(2 \times \frac{1}{4}L)^{-1} = 0.02\ \text{cm}^{-1}$, i.e. four times the FSR of the M_1–M_2 cavity.

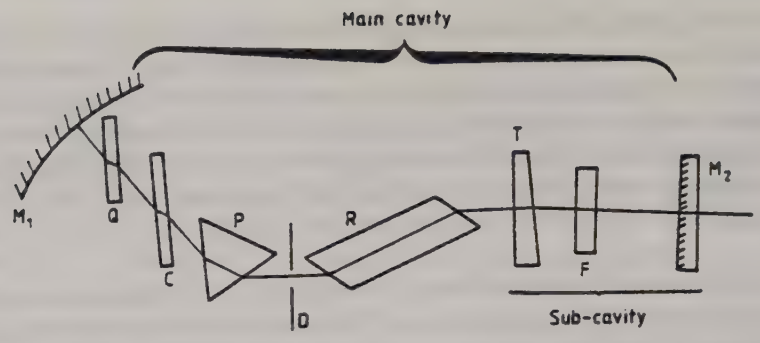


Figure 2. Schematic diagram of the tunable-wavelength single-mode oscillator. The notation is the same as in figure 1, except that, in addition, a Fabry–Perot etalon F and a tilted glass plate T are used. The sub-cavity length is one quarter of the main cavity length.

With such an oscillator, the wavelength reproducibility is still insufficient for the experiment; this is solved by inserting a 10 mm thick high-index glass plate, at an angle of incidence close to the normal, inside the subcavity. It acts as a low finesse, 0.28 Å FSR Fabry–Perot interferometer. The fine tuning of the wavelength is achieved by tilting this high-index plate close to normal incidence. This results in a continuous variation of the effective thickness of this Fabry–Perot interferometer and so shifts its transmission peaks. This last modification results in 90% of the laser pulses being single mode, as well as giving a very good reproducibility and tunability of the wavelength.

2.2. Laser diagnostics and performance

Four laser parameters are to be measured accurately: temporal and spectral distribution of the pulse, focused intensity distribution and pulse energy.

(i) Temporal characteristics are measured for each laser shot by a Radiotechnique XA 1003 photodiode with a 150 ps rise-time, connected to a Ferisol OZ 100 B oscilloscope with a bandwidth of 2 GHz. The FWHM pulse duration was set at 50 ns by adjusting the BDN density. Fluctuations around this value did not exceed 2%.

(ii) The spectral distribution is measured for each laser shot with a grating spectrograph, Ebert–Fastie mounting, of 1.50 m focal length and 0.1 Å resolution, and with a Fabry–Perot interferometer of 0.75 Å FSR and a finesse of 60. The wavelength resolution is 0.014 Å. The resolution of the grating spectrograph, being much smaller than the Fabry–Perot FSR, ensures that no confusion is possible between different orders of the Fabry–Perot interferometer during the wavelength scanning. The full bandwidth of the multimode oscillator is 0.1 Å with the 4 mm thick calcite plate. Theoretical calculations have shown that for the corresponding mode number (20 modes of the M_1–M_2 cavity) the statistical properties of the laser light should be quite close to those of an ideal chaotic light, at least for third- and fourth-order autocorrelation functions (Debéthune 1972).

(iii) The laser pulse is focused with a planocylindrical lens of focal length 50 cm. The focused laser intensity is determined from surface photometric measurements within the focal volume (Normand and Morellec 1980, Morellec *et al* 1976). The cross section of the focal region is measured to be 3.4×10^{-3} cm^2, with an accuracy of 10%.

(iv) The pulse energy is measured for each shot with a Gen Tec ED-200 joulemeter. The output energy of the oscillator is 15 mJ.

2.3. General experimental arrangement

Resonant multiphoton ionisation of caesium atoms with coherent and incoherent laser pulses is performed using an experimental arrangement identical to the one employed in previous work (Lompré *et al* 1978, Morellec *et al* 1976). Briefly, the laser pulse is amplified by two Nd-glass pre-amplifiers and then made to pass through a spatial filter telescope which consists of a magnifying afocal system with two lenses of focal lengths 150 and 465 mm respectively with a pinhole of 0.3 mm diameter at the common focal point. This filter improves the uniformity of the focal cross section by getting rid of unwanted spatial Fourier components (Miller and Smith 1978). The filtered beam finally passes through a 16 mm Nd-glass amplifier. The laser pulse is focused by a planocylindrical lens of 50 cm focal length into a vacuum Pyrex cell where the atomic density of the caesium vapour in saturated conditions is 6×10^{10} cm^{-3}. The ions resulting from the laser interaction with the atoms in the focal volume are extracted with a transverse electric field of 500 V cm^{-1}, separated by a time-of-flight spectrometer and then detected in an electron multiplier.

3. Experimental results

The experiment consists of measuring the number of ions formed as a function of laser frequency in the neighbourhood of the resonant three-photon transition 6S→6F for a fixed laser intensity. As shown in figure 3, as the ground state of the caesium atom has a

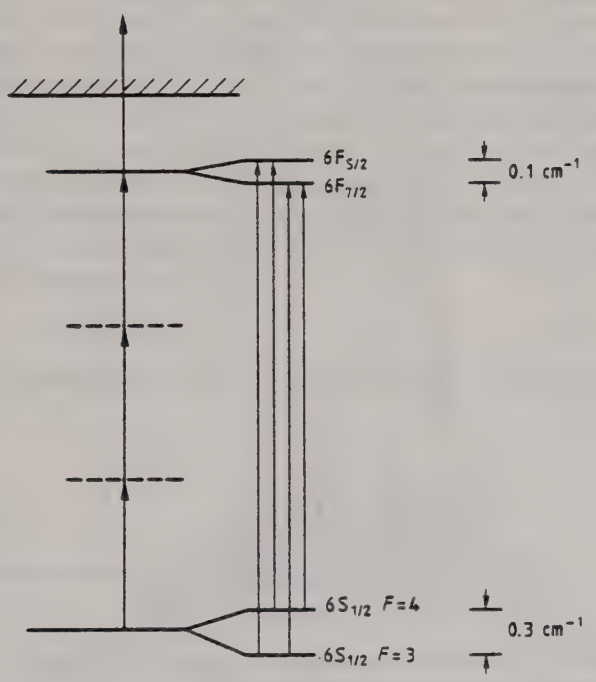


Figure 3. Schematic representation of the four-photon ionisation of the caesium atom when the laser frequency is tuned to the resonant three-photon transition 6S→6F. The four components of the resonance are due to the hyperfine structure of the 6S level and the fine structure of the 6F level.

hyperfine structure (separation 0.3 cm^{-1}) and the 6F doublet has a fine structure (separation 0.1 cm^{-1}), four resonance peaks are expected. Measurements are repeated over a number of laser intensity values to obtain a set of resonance profiles for different values of the laser intensity.

3.1. Resonance profiles with a coherent laser pulse

Figure 4 shows three typical resonance profiles obtained for three different laser intensities with a single-mode laser pulse which has a duration $\tau = 50$ ns and a spectral width of 15 MHz. The analysis of these resonance profiles confirms previous results (Petite *et al* 1979) and can be summarised by the following remarks.

Firstly, it should be pointed out that the amplitude of these resonance profiles, i.e., the ratio between resonant and off-resonance ionisation rates, goes beyond four orders of magnitude. Here, measurements are restricted to the upper part of the resonance profiles because measurement of the number of ions is only possible over three orders of magnitude because of two limiting factors: the sensitivity of ion detection, and saturation in the interaction volume when most of the atoms are ionised (Lompré *et al* 1978).

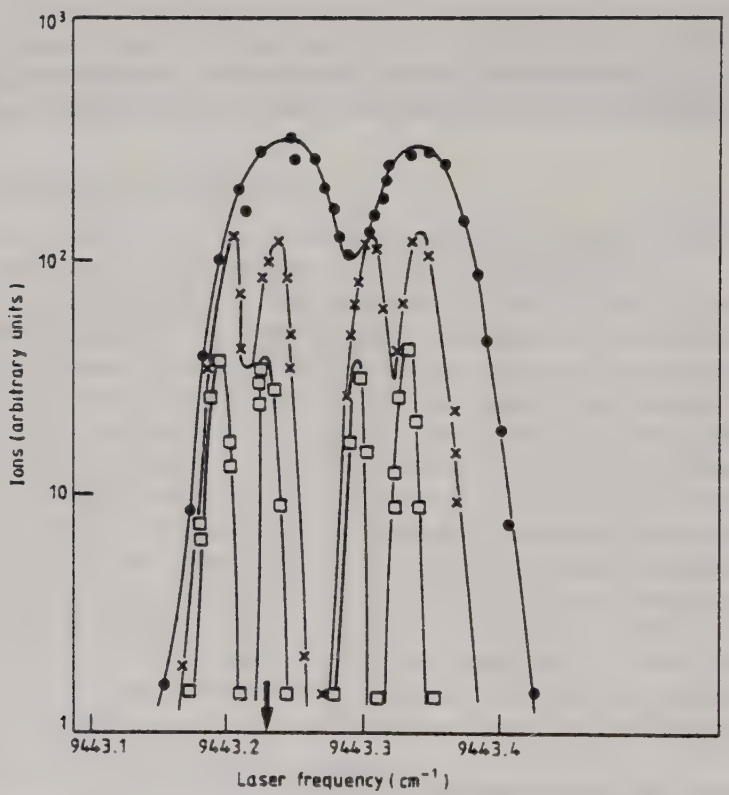


Figure 4. Variation of the number of atomic caesium ions as a function of the laser frequency in vacuum, in the neighbourhood of the three-photon transitions 6S → 6F, with a single-mode laser pulse, and for increasing values of laser intensity (—□—, 4.3×10^7 W cm^{-2}; —×—, 6.7×10^7 W cm^{-2}; —●—, 9.9×10^7 W cm^{-2}). The arrow indicates the central frequency position of the three-photon transition 6S → 6F derived from spectroscopic tables.

Secondly, when the laser intensity is increased from 4.3×10^{7} to 9.9×10^{7} W cm^{-2}, figure 4 clearly demonstrates a shift in resonance profiles due to atomic level shifts under the influence of the laser field. This resonance shift $\delta\omega$ is linear with respect to the laser intensity I. $\delta\omega=\alpha I$ with $\alpha=2$ cm^{-1}/GW cm^{-2}, in excellent agreement with previous measurements (Morellec *et al* 1976, Lompré *et al* 1978) and calculations (Gontier and Trahin 1978, Crance 1978).

Thirdly, the width of each of the four resonance peaks is much broader than the 15 MHz laser bandwidth. This is due to both an intensity-independent Doppler broadening which contributes 300 MHz, and an intensity-dependent broadening due to the fact that the spatial distribution of laser intensity is inhomogeneous in the ionisation region. As the resonance shift is linear with respect to the laser intensity, there is a large spread in the shifts, which appears as a broadening in the resonance profiles and contributes approximately 200 MHz for $I=4.3\times10^{7}$ W cm^{-2}.

Lastly, the number of ions formed at the maximum of the resonance profiles varies with the laser intensity I as $I^{2.5\pm0.2}$ in the low laser intensity range, and as $I^{2\pm0.2}$ in the high laser intensity range. These results will be developed and discussed in § 5.

3.2. Resonance profiles with an incoherent laser pulse

In multimode operation, two adjacent longitudinal modes are separated by $1/2L$, where L is the optical length of the oscillator cavity, i.e. 5×10^{-3} cm^{-1} for $L=1$ m, with the laser used in the present experiment. The intensity distribution of the modes is approximately Gaussian. The laser bandwidth b can be varied between 2×10^{-2} and 1.5 cm^{-1}. Most of the experimental results have been obtained in the range 3×10^{-2}–0.1 cm^{-1}. For $b=0.1$ cm^{-1}, i.e. 3 GHz, the bandwidth is equal to the separation (0.1 cm^{-1} in laser frequency units) of the hyperfine structure of the ground state 6S, and larger than the separation (3.3×10^{-2} cm^{-1} in laser frequency units) of the fine structure of the 6F state. $b=0.1$ cm^{-1} is also much larger than the width of the resonant state for $I=3\times10^{7}$ W cm^{-2}. The beating between adjacent modes modulates the temporal laser pulse, and produces peak intensities as shown in figure 5. The coherence time, which is defined as the characteristic time of the most rapid fluctuations, is defined by b^{-1}, i.e. 3×10^{-10} s for $b=0.1$ cm^{-1}. The instantaneous laser intensity can be expressed in the form (Lecompte *et al* 1975)

$$I(t)=\overline{I_{M}}G(t)i(t) \tag{1}$$

where $\overline{I_{M}}$ is the maximum time-averaged intensity. $G(t)$ is the normalised temporal

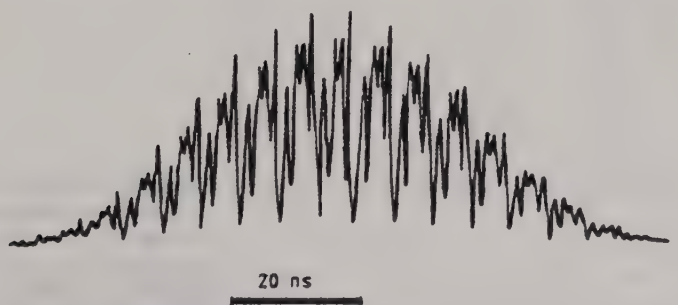


Figure 5. Temporal variation of the intensity of a multimode laser pulse with a bandwidth $b=0.1$ cm^{-1}.

distribution function envelope of the laser intensity; its duration is the same as in single-mode operation, i.e. 50 ns. $i(t)$ is a periodic function with a stochastic pattern which depends especially on the relative phases of modes. We use a photodiode and an oscilloscope whose combined rise-time is much longer than the coherence time to deliberately integrate intensity fluctuations, so that we measure only the time-averaged intensity

$$\bar{I} = \bar{I}_M G(t). \tag{2}$$

The first question which arises is can we consider a laser pulse with a 3 GHz bandwidth as being Gaussian in the same way as chaotic light is? If we can, it should be possible to check that the non-resonant four-photon ionisation rate of Cs induced by the 3 GHz bandwidth laser pulse is enhanced by 4! compared with the rate induced by a single-mode laser pulse of the same average intensity, in agreement with previous calculations (Ducuing and Bloembergen 1964, Lambropoulos *et al* 1966, Debéthune 1972, Sanchez 1975) and measurements (Lecompte *et al* 1975, Arslanbekov 1976).

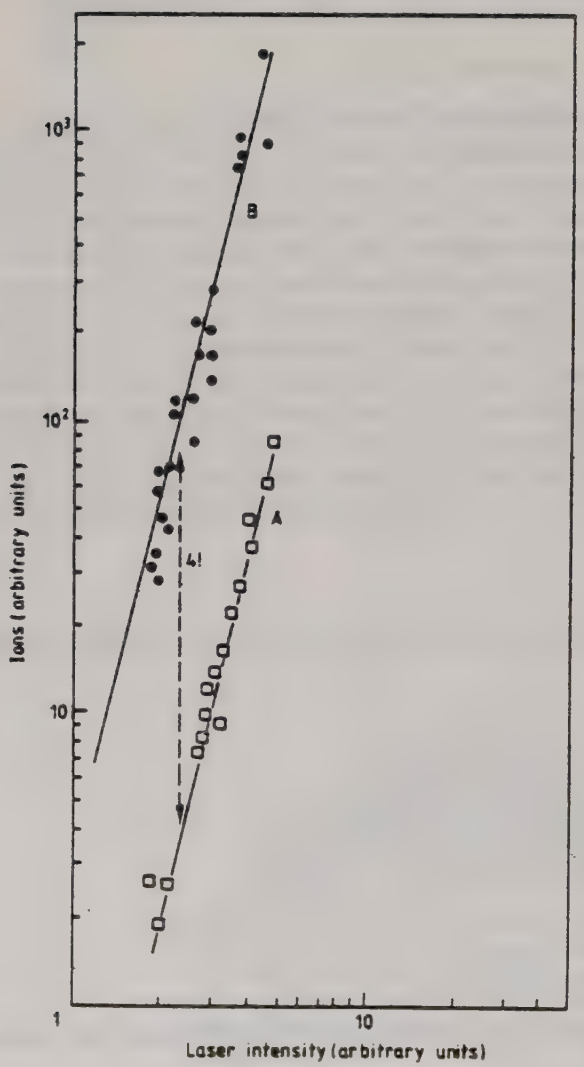


Figure 6. Log–log plot of the variation of the number of ions formed as a function of laser intensity in the non-resonant four-photon ionisation of Cs. The laser frequency is displaced by 10 cm^{-1} from the resonance, and the bandwidth $b = 0.1$ cm^{-1}. A, single-mode laser pulse; B, multimode laser pulse (bandwidth 3 GHz).

This is the reason why the laser frequency has been tuned $10\,cm^{-1}$ away from the resonance. Figure 6 gives us the answer: an enhancement factor of 25 ± 2 due to the statistical properties of the laser pulse is indeed observed. In addition, it should be pointed out that the bandwidth or the number of modes from which the statistical properties of the laser pulse can be considered as Gaussian depends on the order of non-linearity of the ionisation process. The higher the order, the larger the bandwidth has to be (Debéthune 1972).

Figure 7 shows four typical resonance profiles obtained with a $3 \times 10^{-2}\,cm^{-1}$ bandwidth laser pulse for four different laser intensities. Experimental points have been omitted to make the figure clearer. The fluctuations in the ion signal are highly asymmetric, being larger in the high-frequency wing of the resonance curve. The fine structure of the 6F resonant state is no longer resolved when the laser intensity is increased beyond $3 \times 10^{7}\,W\,cm^{-2}$ because of an intensity-dependent broadening. As

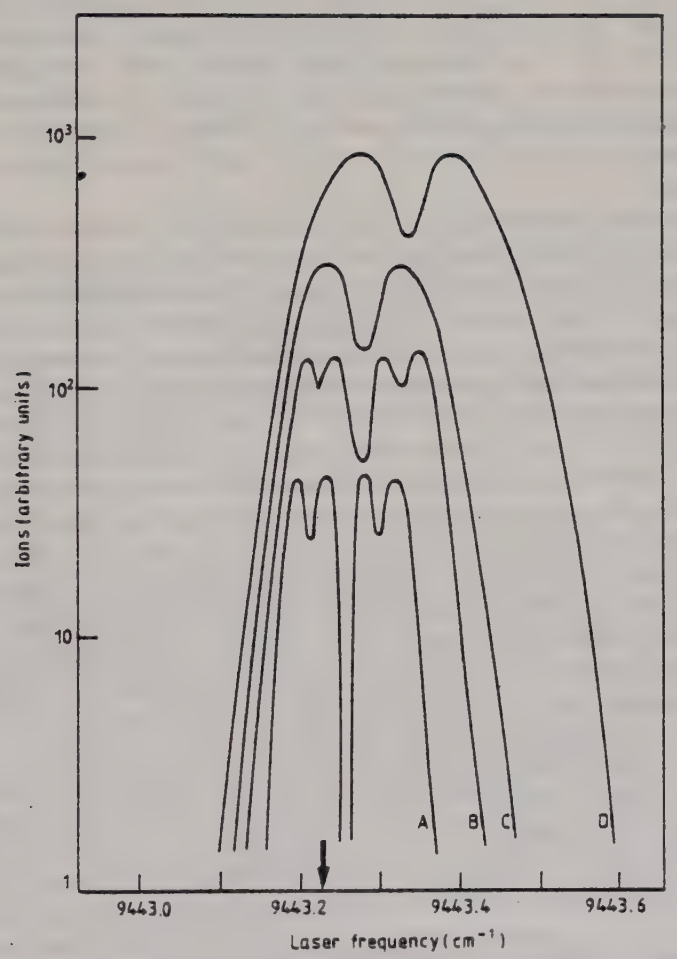


Figure 7. Variation of the number of atomic caesium ions as a function of laser frequency in vacuum in the neighbourhood of the resonant three-photon transition 6S→6F. Laser bandwidth $b = 3 \times 10^{-2}\,cm^{-1}$; laser intensity: A, $1.4 \times 10^{7}\,W\,cm^{-2}$; B, $2 \times 10^{7}\,W\,cm^{-2}$; C, $3.2 \times 10^{7}\,W\,cm^{-2}$; D, $5.7 \times 10^{7}\,W\,cm^{-2}$.

far as the comparison with single-mode resonance profiles is concerned, three aspects have to be considered. Firstly, the resonance shift is enhanced due to intensity fluctuations. Secondly, combined coherence effects and bandwidth effects give a small enhancement in the resonant multiphoton ionisation rate. Lastly, the resonance width is governed by the laser bandwidth at low intensity and is statistically enhanced at high intensity.

4. Discussion of experimental results

4.1. Enhancement of the resonance shift due to laser intensity fluctuations

Figure 7 clearly demonstrates a shift in the resonance profiles when the laser intensity is increased from 1.4 to 5.7×10^{7} W cm^{-2}. The arrow indicates the central frequency position of the three-photon transition 6S → 6F derived from spectroscopic tables. The resonance shift $\delta\omega$ is linear with respect to the laser intensity $\bar{I}$, $\delta\omega=\beta\bar{I}$ with $\beta=(5.6\pm0.3)$ cm^{-1}/GW cm^{-2}, when β is expressed in terms of energy of the three-photon transition 6S → 6F. This resonance shift obtained with multimode laser pulses is significantly larger than the corresponding resonance shift obtained with coherent laser pulses and for which $\delta\omega=\alpha I$, with $\alpha=2$ cm^{-1}/GW cm^{-2}. This result clearly shows that the resonance shift is enhanced by photon-correlation effects when an incoherent laser pulse is used.

The statistical enhancement of the resonance shift is shown directly in figure 8. This figure gives two resonance profiles obtained at the same laser intensity $\bar{I}=5.6\times10^{7}$ W cm^{-2} with a coherent laser pulse and an incoherent laser pulse which has a bandwidth of 0.1 cm^{-1} (FWHM). In the resonance profiles obtained with the multimode laser pulse, the 6F fine structure is not resolved because the laser bandwidth is larger. The important result of figure 8 is the additional shift induced by the incoherent laser pulse. This additional shift is $(6.6\pm0.5)\times10^{-2}$ cm^{-1} expressed in laser frequency units, i.e. $(2\pm0.15)\times10^{-1}$ cm^{-1} in terms of the energy of the three-photon transition 6S → 6F.

Figure 9 shows the two laws of variation of the resonance shift $\delta\omega$, as a function of the laser intensity, with a coherent and an incoherent laser pulse. $\delta\omega$ is expressed in terms of the energy of the three-photon transition 6S → 6F. The difference between the two lines gives the additional shift due to the laser intensity fluctuations, i.e. (3.6 ± 0.3) cm^{-1}/GW cm^{-2}. This experimental result is in excellent agreement with a previous calculation (Gontier and Trahin 1979b). Figure 9 shows that the resonance shift obtained with incoherent laser pulses is enhanced by a factor of 2.8 ± 0.2 compared with the shift obtained with coherent pulses. All these values do not change significantly when the laser bandwidth is varied from 3×10^{-2} cm^{-1} to 0.15 cm^{-1}.

As far as comparison with theory is concerned, there are two kinds of calculations within the zero-bandwidth (Gontier and Trahin 1979b) and the large-bandwidth (Zoller and Lambropoulos 1980) limits according to whether the laser bandwidth is respectively smaller or larger than the coherent Stark shift, the bound–bound coupling and the ionisation width. For the large-bandwidth limit, the statistical shift enhancement factor is an increasing function of the laser bandwidth, reaching a value of four asymptotically according to the calculation (Zoller and Lambropoulos 1980) adapted to the four-photon ionisation process. The zero-bandwidth limit calculation, which will be developed in § 5, gives a statistical shift enhancement factor identical to our experimental value.

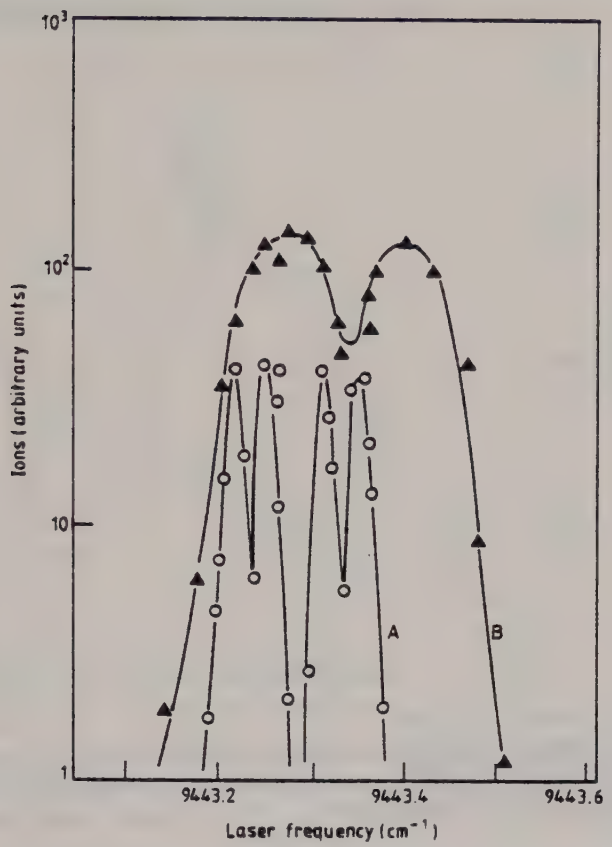


Figure 8. Resonance profiles obtained with (A) a single-mode laser pulse and (B) a multimode laser pulse with a bandwidth $b = 0.1\ cm^{-1}$. The laser intensity for both profiles is $5.6 \times 10^7\ W\ cm^{-2}$.

4.2. Enhancement of resonant multiphoton ionisation rate due to coherence effects

As shown in figure 8, the direct comparison between two resonance profiles obtained at the same intensity with a coherent and an incoherent laser pulse with a bandwith $b = 0.1\ cm^{-1}$ shows that the resonant multiphoton ionisation rate with the incoherent laser pulse is higher than that induced by a coherent pulse. The efficiency factor h of the multimode radiation is no longer 4! as for the non-resonant process, but depends on the details of the resonant process. It depends mainly on the laser intensity, photon correlation effects and laser bandwidth effects. The laser intensity dependence is shown in figure 10 in a log–log plot of the variation of the number of ions N_{max} formed at the maximum of the resonance profile as a function of the laser intensity. N_{max} varies with $\bar{I}$ as $\bar{I}^{2.5}$ at low intensity and $\bar{I}^2$ at high intensity in the same way for both coherent and incoherent pulses. $h = 3$ at $\bar{I} = 2 \times 10^7\ W\ cm^{-2}$, and $h = 2.5$ at $\bar{I} = 5.6 \times 10^7\ W\ cm^{-2}$. These results will be explained simply in § 5.

Figure 11 shows the variation of the efficiency factor h of the multimode radiation as a function of the laser bandwidth b for a laser intensity of $5.6 \times 10^7\ W\ cm^{-2}$. This curve presents a maximum which is centred on laser bandwidth values between 5×10^{-2} and $0.2\ cm^{-1}$. The increase in h as a function of b in the first part can be explained in terms of statistical effects while the decrease in h with increasing b can be explained in terms

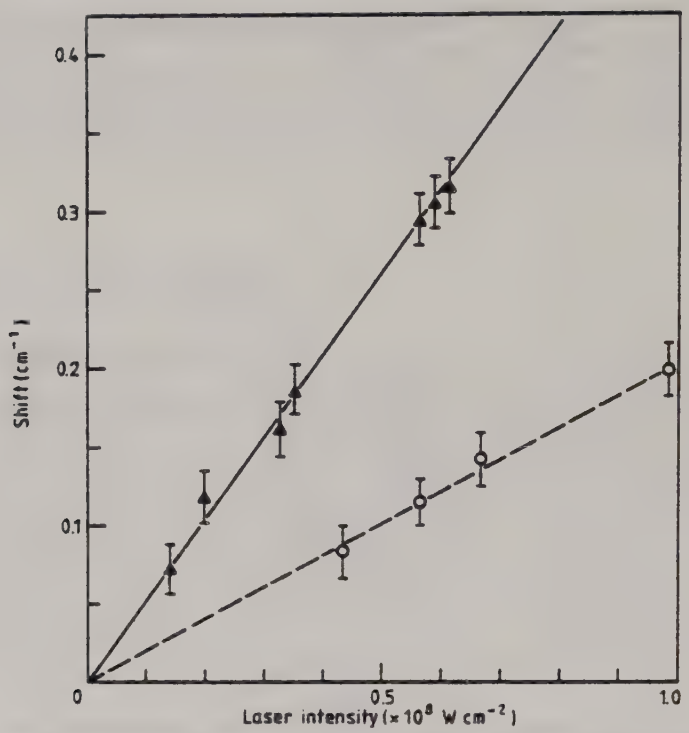


Figure 9. Resonance shift, expressed in terms of the energy of the three-photon transition 6S → 6F, as a function of laser intensity for a single-mode laser pulse (broken line) and an incoherent laser pulse (full line).

of bandwidth effects. When the laser bandwidth becomes larger than 1 cm^{-1} the resonant multiphoton ionisation rate induced by an incoherent laser pulse becomes smaller than that induced by a coherent laser pulse of the same intensity.

4.3. Statistical enhancement of the resonance width

The width of the resonance profiles induced by multimode laser pulses depends mainly on the laser bandwidth, the intensity-dependent broadening and statistical broadening. Measurements of resonance widths expressed in terms of laser frequency units are regrouped in figure 12 as a function of the laser intensity for different laser bandwidths. Curves A and B, obtained respectively with a single-mode pulse and a 3×10^{-2} cm^{-1} bandwidth multimode pulse, relate to the width of one of the four peaks of the resonance profiles as shown in figure 7 (curves A and B) while the curves C and D in figure 12, obtained with multimode pulses with larger bandwidths (8×10^{-2} and 0.15 cm^{-1} respectively) relate to the width of one of the two main peaks of the resonance profiles as shown in figure 7 (curves C and D).

At low intensity, typically 2×10^{7} W cm^{-2}, the resonance width is only governed by the laser bandwidth b, and is approximately equal to $0.6b$. This result confirms previous measurements performed with bandwidth-limited 15 ps laser pulses with a bandwidth of 1.4 cm^{-1} (Lompré *et al* 1978). As the laser intensity is increased, an intensity-dependent broadening appears with both coherent and incoherent laser pulses. For example, this intensity-dependent broadening reaches 4×10^{-2} cm^{-1} for a single-mode

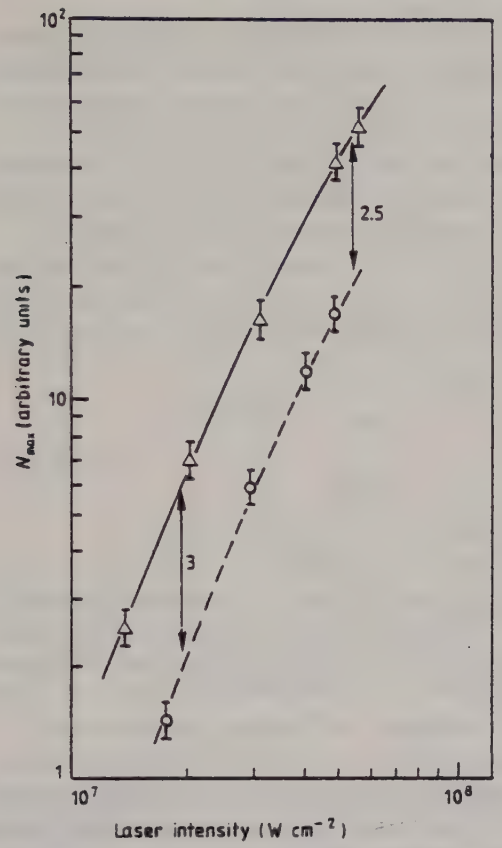


Figure 10. Variation of the number of ions N_{max} formed at the maximum of the resonance profiles as a function of laser intensity for a single-mode laser pulse (broken curve) and for a multimode laser pulse with a bandwidth $b = 0.1$ cm^{-1} (full curve).

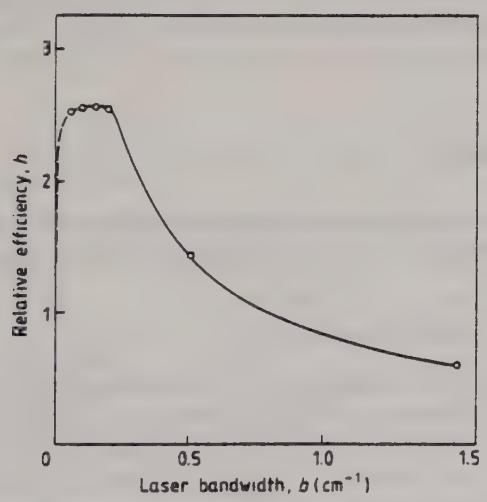


Figure 11. Relative efficiency factor h of the resonant ionisation rate induced by a multimode pulse as a function of the laser bandwidth b of the multimode pulse. The laser intensity is 5.6×10^7 W cm^{-2}.

pulse at 10^8 W cm^{-2}. Figure 12 clearly shows that the resonance width measured at 10^8 W cm^{-2} for an incoherent laser pulse is significantly larger than the bandwidth contribution and the intensity-dependent broadening contribution for a coherent

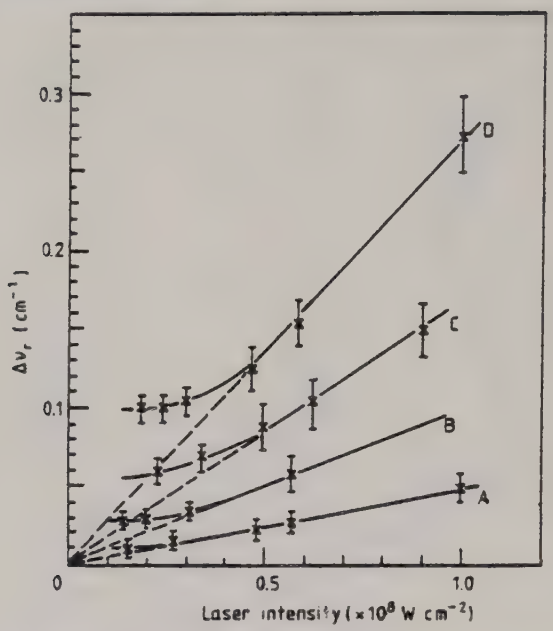


Figure 12. Variation of the resonance width as a function of laser intensity for single-mode laser pulses (A) and multimode laser pulses with bandwidths $3\times10^{-2}\,\mathrm{cm}^{-1}$ (B), $8\times10^{-2}\,\mathrm{cm}^{-1}$ (C) and $0.15\,\mathrm{cm}^{-1}$ (D).

pulse. This result can only be explained in terms of a statistical enhancement of the resonance width. As shown in figure 12, the width of the resonance profiles varies linearly as a function of the laser intensity. All the curves originate from zero, as shown by extrapolated broken lines. In addition the width of resonance profiles also varies linearly with respect to the bandwidth b.

5. Theoretical considerations

The aim of this section is not to give a sophisticated calculation, but rather to contribute to the qualitative understanding of some of the experimental results discussed above.

5.1. Statistical enhancement of the resonance shift

It is worth emphasising that quite simple theoretical considerations can lead to a factor of three for the enhancement factor of the Stark shift in chaotic light. We use here the zero-bandwidth model (Gontier and Trahin 1979b, Zoller 1979) together with the single-rate approximation (SRA) (Petite *et al* 1979). In addition, we neglect the effect of the fine structure of the 6F level which would necessitate detailed calculations. As is well known, the ionisation probability for a single-mode pulse is given by

$$P_{\mathrm{SM}} = 2\gamma r_{01}^2 t \frac{I_0^4}{(\Delta-\alpha I_0)^2+\gamma^2 I_0^2} \tag{3}$$

in which the following notations are adopted: t is the interaction time (square pulse), α is the Stark shift coefficient (coherent light), γ is the ionisation cross section of the

resonant level, Δ is the static detuning $3\omega_L - \omega_{10}$, ω_{10} is the resonant frequency, ω_L is the laser frequency, I_0 is the mean laser intensity and r_{01} is the three-photon effective dipole matrix element we now let $K = 2\gamma r_{01}^2 t$.

The validity conditions for SRA, namely $\gamma t \gg 1$ and $P_{SM} \ll 1$, are fulfilled for our intensity range, in accordance with the numerical values of the parameters given by Petite *et al* (1979). In this way, we have $\gamma/\alpha = \varepsilon = 0.02 \ll 1$.

We now calculate the ionisation probability in a chaotic field, P_{CF}, by averaging over the probability distribution of I. Let $\xi = \Delta/\alpha I_0$, $v = I/I_0$. Then ξ is the detuning measured in coherent Stark shifts units. As $\varepsilon \ll 1$, the Lorentzian curve under the integrand can be approximated by a delta function:

$$\frac{1}{(v-\xi)^2 + (\varepsilon v)^2} \simeq \frac{\pi}{\varepsilon\xi}\delta(v-\xi). \tag{4}$$

We obtain

$$P_{CF} = \frac{KI_0^2}{\alpha^2}\frac{\pi}{\varepsilon\xi}\int_0^\infty e^{-v} v^4 \delta(v-\xi)\,dv = \frac{\pi K I_0^2}{\varepsilon\alpha^2} e^{-\xi}\xi^3 H(\xi). \tag{5}$$

The step function H is inserted to avoid an exponential increase of P_{CF} for large negative detunings. Resonance occurs for

$$d(e^{-\xi}\xi^3)/d\xi = 0 \qquad \text{i.e. } \Delta = 3\alpha I_0. \tag{6}$$

This derivation may still be applied to the case of an N-photon resonant–$(N+1)$-photon ionisation process in a noble gas where N is 10 or more provided that the SRA remains valids, a not unrealistic proviso (Lompré *et al* 1980a). One then finds that the Stark shift is multiplied by N in a chaotic field.

The physical interpretation seems obvious: the ions are created mainly when the intensity is higher than average; the transition frequency is then shifted more than average. The results of this calculation are summarised in table 1.

Table 1. Ionisation probability, resonance width and shift calculated within the zero-bandwidth model.

Light statistics	Ionisation probability at resonance, P_{res}	FWHM of the resonance curve	Resonant frequency
Coherent (SM)	KI_0^2/γ^2	$2\gamma I_0$	$\omega_r + \alpha I_0$
Chaotic (CF)	$4.22\varepsilon KI_0^2/\gamma^2$	$4.13\alpha I_0$	$\omega_r + 3\alpha I_0$

5.2. Relative efficiency of the multimode pulse

At this point, the reader might remark that some of the results of these calculations seem to contradict our experimental results. Firstly, the single-rate approximation gives a value of two for the slope $n = \partial \lg P_{res}/\partial \lg I$, while experimental values vary between 2 and 2.5 as described in § 4.2. Secondly, a much higher ionisation probability is predicted at resonance for the coherent light (a factor of 12 higher), whereas we found the signal for chaotic light was higher by a factor of 2.5.

The key point in understanding these apparent discrepancies is the existence of experimental effects, such as the Doppler effect, the bandwidth effect and spatial and temporal effects in laser intensity, which can widen the coherent resonance curve (Gontier and Trahin 1979b). For example, the FWHM of the Doppler effect is 10^{-2} cm^{-1} while the theoretical FWHM at 10^8 W cm^{-2} for the coherent pulse is 0.267×10^{-2} cm^{-1} (Petite *et al* 1979). If we admit that taking these effects into account is equivalent to a convolution of the theoretical resonance curve by a function of Δ, of unit integral (which is rigorously true for the Doppler effect), we see that the integrals of the resonance curves $S = \int P(\Delta)\, d\Delta$ should not be affected.

A good approximation for the integral S of the resonance curve is the product of its FWHM with the ionisation probability at resonance. We thus compute these products for two experimental resonance curves (single-mode and multimode of 0.15 cm^{-1} bandwidth) at $I_0 = 10^8$ W cm^{-2} and find

$$\frac{S_{CF}}{S_{SM}} = 2.5 \times (0.22 \text{ cm}^{-1}/0.05 \text{ cm}^{-1}) = 11 \tag{7}$$

for the ratio of the products. The value of 0.05 cm^{-1} is taken directly from figure 12 (curve A), while the value of 0.22 cm^{-1} for multimode light is taken from figure 12 (curve D) where the 0.03 hyperfine splitting has been subtracted.

We now evaluate this ratio with the theoretical values in table 1:

$$\frac{S_{CF}}{S_{SM}} = \frac{(KI_0^2/\gamma^2)}{(KI_0^2/\gamma^2)} \frac{4.22\varepsilon \times 4.13\alpha I_0}{2\gamma I_0} = \frac{4.22 \times 4.13}{2} = 8.7. \tag{8}$$

Hence we obtain qualitative agreement between theory and experiment. In order to fit the experimental value of 2.5 at resonance in favour of the chaotic light, one would need to take all the experimental effects into account and use extensive computerised numerical integration.

Similarly, values of the slope n differing from two can be explained by the experimental widths. For example, a calculation within the single-rate approximation, taking only the Doppler effect and the variation of the laser intensity during the pulse into account, gives values of n varying continuously from 2.8 to 2.5 between 2×10^7 and 10^8 W cm^{-2}.

Another point worth mentioning is that the experimental results show the existence of a non-zero optimum bandwidth for which the ion signal at resonance is maximum as shown in figure 11. It is reasonable to assume, as already mentioned in § 4.2, that the enhancement of P_{CF} at the resonance, which occurs first when the number of modes is increased above one, is due to increasing statistical effects, while the final decrease as b increases further is a bandwidth effect (the statistics remain Gaussian all the time) accounted for qualitatively in currently available calculations (Agostini *et al* 1978, Zoller and Lambropoulos 1980) which predicted that at the resonance $P_{CF} \propto 1/b$ for large bandwidths.

5.3. The widths of resonance profiles

Finally, we discuss qualitatively the pattern of figure 12 which gives the widths (FWHM) of the experimental resonance curves as a function of intensity and bandwidth. We first have to explain the fact that the widths of these resonance curves for small I are less than the widths of the corresponding laser intensity distributions; we recall that the

quantity which really matters for the ionisation probability is the frequency sum of the first three photons absorbed, whose individual detunings can compensate each other. We can thus define an 'effective lineshape' for the laser light $G_{\text{eff}}(\omega - 3\omega_L)$ as a function of the laser lineshape $G(\omega - \omega_L)$:

$$G_{\text{eff}}(\omega - 3\omega_L) = \iiint G(\omega_1 - \omega_L)G(\omega_2 - \omega_L)G(\omega_3 - \omega_L) \times \delta[\omega - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)]\, d\omega_1\, d\omega_2\, d\omega_3. \tag{9}$$

$G_{\text{eff}}(\omega - 3\omega_L)$ is thus the third autoconvolution power of $G(\omega - \omega_L)$. The integral (9) can be evaluated analytically for Gaussian and Lorentzian lineshapes. The results are given in table 2. Thus for Lorentzian and Gaussian lineshapes the FWHM of G_{eff} is respectively 3 times and $\sqrt{3}$ times the FWHM of the laser line b. If we now assume that for low intensities ($\sim 10^7$ W cm^{-2}) the FWHM of the resonance curve (due mainly to bandwidth effects) is given by the FWHM of G_{eff}, we find, returning to one-photon units, that the FWHM of the resonance curve for low intensities is b and $b/\sqrt{3}$ respectively for Lorentzian and Gaussian lineshapes.

Table 2. Calculated effective lineshapes for Lorentzian and Gaussian laser lineshapes.

Laser lineshape	$G(\omega - \omega_L)$	FWHM of $G(\omega - \omega_L)$	$G_{\text{eff}}(\omega - 3\omega_L)$	FWHM of G_{eff}
Lorentzian	$[(\omega - \omega_L)^2 + (\frac{1}{2}b)^2]^{-1}$	b	$[(\omega - 3\omega_L)^2 + (\frac{3}{2}b)^2]^{-1}$	$3b$
Gaussian	$\exp(-4 \ln 2(\omega/b)^2)$	b	$\exp(-\frac{4}{3} \ln 2(\omega/b)^2)$	$\sqrt{3}b$

The result for the Lorentzian shape agrees with the one obtained (Zoller and Lambropoulos 1980) by much more rigorous methods and the result for the Gaussian shape (much closer to our experimental lineshape) seems to fit the FWHM's of our experimental resonance curves well at low intensities.

We now discuss the pattern of figure 12 for higher intensities. If we assume that the ionisation probability can be calculated simply by taking the zero-bandwidth formula (5) and convoluting it with G_{eff}, we have

$$P_{\text{CF}}(\Delta_0) \propto \int \exp(-\Delta/\alpha I_0)(\Delta/\alpha I_0)^3 G_{\text{eff}}(\Delta - \Delta_0)\, d\Delta = \int \rho(\Delta) G_{\text{eff}}(\Delta - \Delta_0)\, d\Delta. \tag{10}$$

One can estimate the FWHM of P_{CF} in the following way. We interpret G_{eff}, ρ and P_{CF}, up to constant factors, as probability distributions for random variables X, Y and $X + Y$ respectively, where X and Y are assumed to be independent. It then follows from standard theorems that the variance of P_{CF} is given by

$$\text{var}(P_{\text{CF}}) = \text{var}(X) + \text{var}(Y). \tag{11}$$

For both G_{eff} and ρ it is reasonable to approximate the FWHM of the probability

distribution by twice the root-mean-square deviation. So

$$\text{FWHM}(P_{\text{CF}}) = (\text{FWHM}^2(G_{\text{eff}}) + \text{FWHM}^2(\rho))^{1/2}$$
$$= [3b^2 + (4.13\alpha I_0)^2]^{1/2} \tag{12}$$

according to tables 1 and 2. This formula gives a good approximation to figure 12 (curve D), corresponding to $b = 0.15\ \text{cm}^{-1}$, as shown in figure 13. However, in order to account for the other curves of figure 12 with formulae similar to (12), it is necessary to modify the factor 4.13 of equation (12), which means physically that statistics must be considered which are not fully Gaussian; 4.13 is the FWHM of the function $e^{-\xi}\xi^3$, and will have to be replaced by the FWHM of $\varphi(\xi)\xi^3$, where $\varphi(\xi)$ stands for the intensity distribution for light statistics intermediate between Gaussian and coherent ones.

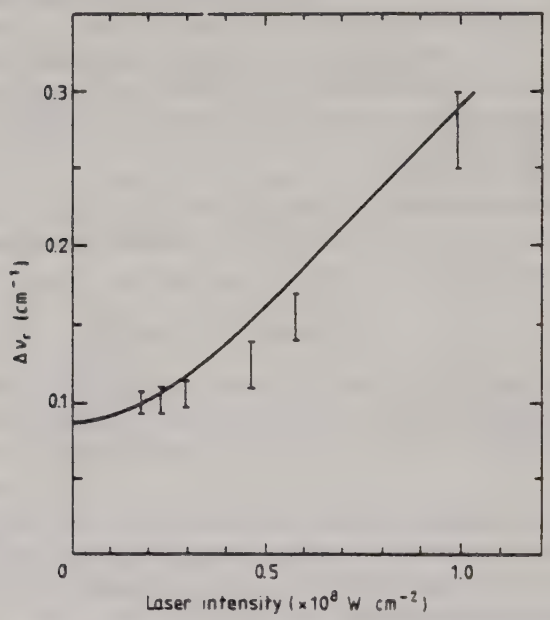


Figure 13. Variation of the resonance width as a function of laser intensity for a multimode laser pulse with a bandwidth $b = 0.15\ \text{cm}^{-1}$. The full curve is derived from equation (14). Experimental points are taken from figure 12 (curve D).

6. Conclusions

A sophisticated laser has been used to investigate photon correlation effects in four-photon ionisation of caesium atoms via the three-photon resonance on 6F levels. This work has emphasised several important points by comparing resonance profiles induced by single-mode and multimode laser pulses.

Firstly, laser-induced atomic level shifts lead to a shift in resonance profiles. When incoherent laser pulses are used such a shift is enhanced due to intensity fluctuations. The statistical enhancement factor is 2.8 ± 0.2, in excellent agreement with a previous calculation (Gontier and Trahin 1979b) as well as a simple calculation developed in the present paper. The resonance shift varies linearly with laser intensity, and is independent of the laser bandwidth within the range 3×10^{-2}–$0.15\ \text{cm}^{-1}$ where the measurements were performed.

Secondly, at the resonance, the four-photon ionisation rate induced by an incoherent laser pulse is enhanced by 2.5 over that induced by a coherent pulse with the same average intensity. It should be pointed out that this enhancement factor decreases when the laser bandwidth becomes larger than 0.15 cm^{-1}. For example, bandwidth effects cause the resonant ionisation rate induced by a multimode pulse with a bandwidth larger than 1 cm^{-1} to be smaller than that induced by a coherent pulse with the same average intensity.

Thirdly, the resonance width is governed by the laser bandwidth in the low-intensity range, while it is governed by a statistical broadening in the high-intensity range (5×10^7 to 10^8 W cm^{-2}). In addition, it depends on the laser bandwidth, and varies linearly with this bandwidth. A qualitative agreement between experiment and a simple calculation is obtained for large resonance widths if both bandwidth and statistical effects are added correctly.

Acknowledgments

The authors wish to express their gratitude to Dr M Trahin, Dr Y Gontier, M Poirier and J Morellec for helpful discussions. They are gratefully indebted to D Fondant for his assistance with the experiments.

References

Agostini P, Georges A T, Wheatley S E, Lambropoulos P and Levenson M D 1978 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **11** 1733
Armstrong L, Lambropoulos P and Rahman N 1976 *Phys. Rev. Lett.* **36** 952
Arslanbekov T 1976 *Kvant. Elektron.* **3** 213 (transl. *Sov. J. Quant. Electron.* **6** 117)
Aymar M and Crance M 1979 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **12** L667
—— 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 2527
Crance M 1978 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **11** 1931
Crance M and Aymar M 1979 *J Phys. B: At. Mol. Phys.* **12** 3665
Debéthune J-L 1972 *Nuovo Cim. B* **12** 101
Dixit S and Lambropoulos P 1980 *Phys. Rev.* A **21** 168
Drexhage K and Muller-Westerhoff U 1972 *J. Quant. Electron.* QE-**8** 759
Ducuing J and Bloembergen N 1964 *Phys. Rev.* A **133** 1493
Gontier Y and Trahin M 1978a *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **11** L131
—— 1978b *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **11** L441
—— 1979a *Phys. Rev.* **19** 264
—— 1979b *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **12** 2123
Kovarsky V, Perelman N and Todirashku S 1976 *Kvant. Elektron.* **3** 1805 (transl. *Sov. J. Quant. Electron.* **6** 980)
Lambropoulos P, Kikuchi C and Osborn R 1966 *Phys. Rev.* A **144** 1081
Lecompte C, Mainfray G, Manus C and Sanchez F 1975 *Phys. Rev.* A **11** 1009
Lompré L-A, Mainfray G and Manus C 1980a *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 85
Lompré L-A, Mainfray G, Manus C and Thebault J 1978 *J. Physique* **39** 610
Lompré L-A, Mainfray G, Mathieu B, Watel G, Aymar M and Crance M 1980b *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 1799
Lompré L-A, Mainfray G and Thebault J 1977 *J. Appl. Phys.* **48** 1570
Mainfray G and Manus C 1980 *Appl. Opt.* **19** 3935
Miller D and Smith S 1978 *Appl. Opt.* **17** 3804
Morellec J, Normand D, Mainfray G and Manus C 1980 *Phys. Rev. Lett.* **44** 1394
Morellec J, Normand D and Petite G 1976 *Phys. Rev.* A **14** 300
—— 1979 *Appl. Opt.* **18** 141

Mostowski J 1976 *Phys. Lett.* **56A** 87
Normand D and Morellec J 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 1551
Normand D, Petite G and Morellec J 1978 *Phys. Lett.* **65A** 290
Olsen T, Lambropoulos P, Wheatley S E and Rountree S P 1978 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **11** 4167
Petite G 1975 *J. Appl. Phys.* **46** 3462
Petite G, Morellec J and Normand D 1979 *J. Physique* **40** 115
Rachman A, Laplanche G and Jaouen M 1978 *Phys. Lett.* **68A** 433
Sanchez F 1975 *Nuovo Cim.* B **27** 305
—— 1978 *J. Physique* **39** L35
Sanchez F and Lecompte C 1974 *Appl. Opt.* **13** 1071
Soep B 1970 *Opt. Commun.* **1** 433
Teague M, Lambropoulos P, Goodmanson D and Norcross D 1976 *Phys. Rev.* A **14** 1057
Zoller P 1979 *Phys. Rev.* A **19** 1151
Zoller P and Lambropoulos P 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 69

Mostowski J 1976 *Phys. Lett.* **56A** 87
Normand D and Morellec J 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 1551
Normand D, Petite G and Morellec J 1978 *Phys. Lett.* **65A** 290
Olsen T, Lambropoulos P, Wheatley S E and Rountree S P 1978 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **11** 4167
Petite G 1975 *J. Appl. Phys.* **46** 3462
Petite G, Morellec J and Normand D 1979 *J. Physique* **40** 115
Rachman A, Laplanche G and Jaouen M 1978 *Phys. Lett.* **68A** 433
Sanchez F 1975 *Nuovo Cim.* B **27** 305
—— 1978 *J. Physique* **39** L35
Sanchez F and Lecompte C 1974 *Appl. Opt.* **13** 1071
Soep B 1970 *Opt. Commun.* **1** 433
Teague M, Lambropoulos P, Goodmanson D and Norcross D 1976 *Phys. Rev.* A **14** 1057
Zoller P 1979 *Phys. Rev.* A **19** 1151
Zoller P and Lambropoulos P 1980 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 69

Ce mémoire décrit les résultats d'une étude expérimentale du rôle de la cohérence du rayonnement laser dans le phénomène d'ionisation multiphotonique résonnante. L'étude porte sur l'ionisation à 3 + 1 photons de l'atome de Césium, avec résonance à 3 photons sur le niveau 6F.

La comparaison des profils de résonance en lumières monomode et multimode montre notamment que le passage à une lumière incohérente provoque la multiplication du déplacement radiatif de la résonance et de l'aire du profil par les facteurs respectifs 2,8 $\overline{+}$ 0,2 et 6 $\overline{+}$ 30 %, à comparer avec les prévisions théoriques 3 et 3! = 6 obtenues en modélisant le champ laser multimode par un processus aléatoire gaussien monochromatique.

Les propriétés des profils multimodes s'interprètent en termes de compétition entre les effets de la statistique du champ et ceux de la largeur spectrale laser, agissant en sens opposés sur le signal d'ions. Celui-ci est maximal pour une lumière laser d'une trentaine de modes, qui réalise le meilleur compromis entre les deux types d'effets.

Mots-clés :

Ionisation multiphotonique résonnante.
Statistique du champ laser, cohérence optique.
Césium atomique.